

55300

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 0 年    2 月    8 日  
Date of Application:

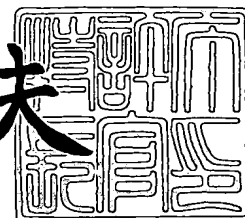
出 願 番 号                      特 願 2 0 0 0 - 0 3 0 0 9 4  
Application Number:  
[ST. 10/C] :                      [ J P 2 0 0 0 - 0 3 0 0 9 4 ]

出      願      人                      ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
Applicant(s):

2 0 0 3 年 1 1 月 2 5 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 3 - 3 0 9 7 2 5 8

【書類名】 特許願

【整理番号】 P99260AL

【提出日】 平成12年 2月 8日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B01D 53/70

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県加古郡播磨町新島 1 6 番 日本エア・リキード株式会社 播磨テクニカルセンター内

【氏名】 平岡 学

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県加古郡播磨町新島 1 6 番 日本エア・リキード株式会社 播磨テクニカルセンター内

【氏名】 川中 秀治

【発明者】

【住所又は居所】 東京都江東区東雲 1 丁目 9 番 1 号 日本エア・リキード株式会社 本社・東京マネジメントセンター内

【氏名】 茨木 義浩

【発明者】

【住所又は居所】 東京都江東区東雲 1 丁目 9 番 1 号 日本エア・リキード株式会社 本社・東京マネジメントセンター内

【氏名】 安藤 伸一

【特許出願人】

【識別番号】 000109428

【住所又は居所】 東京都江東区東雲 1 丁目 9 番 1 号

【氏名又は名称】 日本エア・リキード株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100092266

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島 7 丁目 2 番 7 号大西ビル

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴木 崇生

【電話番号】 06-6838-0505

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100097386

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島 7 丁目 2 番 7 号大西ビル

【弁理士】

【氏名又は名称】 室之園 和人

【電話番号】 06-6838-0505

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100104422

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島 7 丁目 2 番 7 号大西ビル

【弁理士】

【氏名又は名称】 梶崎 弘一

【電話番号】 06-6838-0505

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100105717

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島 7 丁目 2 番 7 号大西ビル

【弁理士】

【氏名又は名称】 尾崎 雄三

【電話番号】 06-6838-0505

**【選任した代理人】****【識別番号】** 100104101**【住所又は居所】** 大阪府大阪市淀川区西中島 7 丁目 2 番 7 号大西ビル**【弁理士】****【氏名又は名称】** 谷口 俊彦**【電話番号】** 06-6838-0505**【手数料の表示】****【予納台帳番号】** 074403**【納付金額】** 21,000円**【提出物件の目録】****【物件名】** 明細書 1**【物件名】** 図面 1**【物件名】** 要約書 1**【プルーフの要否】** 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 パーフルオロ化合物の分解方法及び分解装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 パーフルオロ化合物を含むガスを固体状の反応剤と加熱下で接触させて、その反応剤にフッ素成分を固定するパーフルオロ化合物の分解方法において、

前記反応剤が、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有することを特徴とするパーフルオロ化合物の分解方法。

【請求項 2】 アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有するパーフルオロ化合物の分解用反応剤。

【請求項 3】 前記アルカリ土類金属化合物が、酸化マグネシウムである請求項 2 に記載のパーフルオロ化合物の分解用反応剤。

【請求項 4】 固体状の反応剤を充填した反応部と、その反応部にパーフルオロ化合物を含むガスを供給して反応後のガスを排出可能なガス流通経路と、前記反応部又はその反応部に供給されるガスを加熱する加熱手段とを備えるパーフルオロ化合物の分解装置において、

前記反応剤が、請求項 2 又は 3 に記載のパーフルオロ化合物の分解用反応剤であることを特徴とするパーフルオロ化合物の分解装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、 $\text{SF}_6$ 、 $\text{CF}_4$ 、 $\text{C}_2\text{F}_6$  等のパーフルオロ化合物（以下、PFC という）を反応剤を用いて分解処理する分解方法、それに用いる反応剤及びその分解装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来より、PFC は、半導体工場等においてエッチング剤、機器洗浄剤等に使  
用されている。しかし、そのまま大気放出すると、近年、地球温暖化会議等  
で取り上げられているように、地球の温暖化を引き起こすことが判明して  
おり、使用後

には分解することが望ましいとされている。

#### 【0003】

これまでPFCを分解する技術として、反応剤分解法、触媒分解法、燃焼分解法等が提案されているが、PFCは分子間の結合力がきわめて強く反応性に乏しい（熱分解では、1100℃以上の加熱が必要）ため、反応剤分解法や触媒分解法がエネルギー的に有利となる。このうち、反応剤を用いた分解法は、触媒分解法と比較して、フッ素原子を反応剤に固定できるため、フッ素ガスやフッ酸等が系外に排出されにくく、後処理が不要になるという利点があり、また、原料に水蒸気等を供給する必要がなく、コスト的にも有利な場合も多い。

#### 【0004】

反応剤を用いたPFCの分解法としては、例えば特開平8-187302号公報において弗化炭素類を非酸化性雰囲気中で炭素質固体材料とアルカリ土類金属化合物からなる反応剤に接触させる方法や、特開平10-277363号公報において弗化炭素類を200℃以上で、炭素、アルカリ土類金属、及びアルカリ金属を含有する反応剤に接触させ、ハロゲン成分を反応剤に固定する方法が開示されている。

#### 【0005】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、炭素質固体材料を含む反応剤を用いる場合、造粒・焼成後の強度が不十分になり易く、また、被処理ガス中に酸素等が含まれる場合に炭素が反応で消費され、これにより反応剤の強度が低下して、所望の反応が行いにくいなどの問題があった。

#### 【0006】

そこで、本発明の目的は、化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、PFCを低温で効率良く、安全に分解処理する分解方法、それに用いる反応剤及びその分解装置を提供することにある。

#### 【0007】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記目的を達成すべく、分解反応に使用する反応剤の構成成分

について各種検討したところ、アルカリ土類金属化合物を含有する酸化アルミニウムを反応剤として用いることにより、上記目的が達成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

#### 【0008】

即ち、本発明の分解方法は、パーフルオロ化合物を含むガスを固体状の反応剤と加熱下で接触させて、その反応剤にフッ素成分を固定するパーフルオロ化合物の分解方法において、前記反応剤が、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有することを特徴とする。

#### 【0009】

また、本発明の反応剤は、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有するパーフルオロ化合物の分解用反応剤である。

#### 【0010】

上記において、前記アルカリ土類金属化合物が、酸化マグネシウムであることが好ましい。

#### 【0011】

一方、本発明の分解装置は、固体状の反応剤を充填した反応部と、その反応部にパーフルオロ化合物を含むガスを供給して反応後のガスを排出可能なガス流通経路と、前記反応部又はその反応部に供給されるガスを加熱する加熱手段とを備えるパーフルオロ化合物の分解装置において、前記反応剤が、上記の如きパーフルオロ化合物の分解用反応剤であることを特徴とする。

#### 【0012】

##### [作用効果]

本発明の分解方法によると、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有する反応剤を使用するため、実施例の結果が示すように、化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、PFCを低温で効率良く、安全に分解処理することができる。その理由の詳細は明らかではないが、次のように推測される。

#### 【0013】

つまり、アルカリ土類金属化合物がパーフルオロ化合物と反応してフッ素成分を固定する際、酸化アルミニウムが当該反応を促進させる触媒的な働きを有する

と考えられる。このため、酸化アルミニウムはその間の反応では消費されず、これをバインダー成分とするため、化学的及び強度的により安定な反応剤となる。なお、酸化アルミニウムは単独でも P F C の分解に対して触媒又は反応剤としての機能を有するため、アルカリ土類金属化合物が消費されても P F C の分解率をある程度維持することができる。

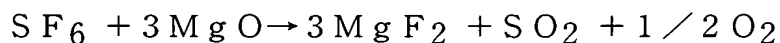
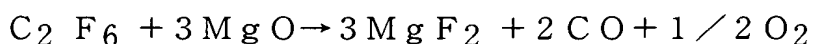
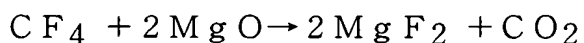
#### 【0014】

また、本発明の反応剤によると、上記と同様の理由により、化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、P F C を低温で効率良く、安全に分解処理することができる。

#### 【0015】

前記アルカリ土類金属化合物が酸化マグネシウムである場合、下記の反応式により、直接、効率良く P F C を分解することができると考えられる。

#### 【0016】



また、他のアルカリ土類金属酸化物についても同様の反応が推定される。なお、金属炭酸塩や金属硝酸塩などの場合では、製造時の焼成中や分解反応中に金属酸化物が生成するなどし、素反応の一部として上記反応が考えられる。

#### 【0017】

一方、本発明の分解装置によると、上記と同様に、化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、P F C を低温で効率良く、安全に分解処理することができる。

#### 【0018】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について、P F C 分解用反応剤、P F C の分解装置、P F C の分解方法の順で説明する。

#### 【0019】

〔P F C 分解用反応剤〕



本発明の P F C 分解用反応剤は、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有するものである。

#### 【0020】

アルカリ土類金属化合物を構成するアルカリ土類金属としては、Be、Mg、Ca、Sr、Baなどが挙げられ、好ましくはCaとMgである。また、アルカリ土類金属化合物としては、アルカリ土類金属の酸化物、水酸化物または炭酸塩等の塩類が挙げられ、好ましいものはアルカリ土類金属の酸化物である。CaまたはMgの酸化物、水酸化物または炭酸塩などの原料の具体例としては、生石灰、消石灰、大理石、炭酸マグネシウム、ドロマイト等が挙げられる。

#### 【0021】

これらのアルカリ土類金属化合物は単独又は混合して使用できる。これらの金属化合物の含有量は、総量で通常、0.1～90重量%、好ましくは1～70重量%、より好ましくは5～50重量%である。これらの金属化合物の含有量が多い程、処理能力が増加するが、含有量が多過ぎると、初期の物性や反応時の物性が低下する傾向がある。

#### 【0022】

酸化アルミニウムとしては、 $\gamma$ -アルミナ、 $\delta$ -アルミナ、これらの混合物などが反応活性が高いため好ましい。酸化アルミニウムの含有量は、通常、10～99.9重量%、好ましくは20～99重量%、より好ましくは50～95重量%である。

#### 【0023】

また、任意成分として、ポリビニルアルコールなどの有機バインダー、又はシリカ系、水酸化カルシウムなどの無機バインダーを使用することもでき、このようなバインダーは、好ましくは反応剤中に20重量%以下で配合される。その他、原料に同伴する不純物などを含有してもよい。また、Zn、Ti、Ni、Fe、Co、Zr、Ptなどの触媒成分を更に含有させてもよく、これらの成分を予めアルミナに担持させてもよい。

#### 【0024】

本発明の反応剤は、上記の成分を含有する固形物であり、分解に供するガスと

の接触機会を高める上では、2～5 mmの粒径を有する粒状物が好ましい。また、粒径が100  $\mu$ m以下の原料が均一に混ざり合ったポーラスな造粒物であるのが好ましい。粒状物とするには、前記した各原料の粉体を混合し、適量の水と共に、或いは、場合によっては適切なバインダーを加えて混練・造粒し、次いで乾燥して水分を蒸発させるという工程で造粒物とすればよい。

#### 【0025】

特に好ましい粒状物は焼成された粒状物であり、焼成後に粉碎して粒状物としたものでもよい。焼成後に粉碎する場合、各原料を混合して圧縮成型後に焼成し、これを粉碎して分級するなどすればよい。

#### 【0026】

混練に使用する混練機としては、混合・造粒が同時に行えるものが好ましく、例えば、ヘンシェルミキサーや縦型ミキサーを用いると混合と造粒を同時に行うことができる。但し、原料の混合をヘンシェルミキサーやV型混合機で行い、次いで造粒を皿型造粒機やドラムペレタイザーで行ってもよい。

#### 【0027】

##### 〔PFCの分解装置〕

本発明のPFCの分解装置は、図1に示すように、固体状の反応剤1を充填した反応部2と、その反応部2にパーフルオロ化合物を含むガスを供給して反応後のガスを排出可能なガス流通経路3a～3cと、前記反応部2又はその反応部2に供給されるガスを加熱する加熱手段4a, 4bとを備える。本実施形態では、被処理ガスの供給量や希釈濃度を調節する弁V1, V2と、被処理ガスを予熱する予熱器5と、排出されるガスを冷却する冷却器6とを更に備える例を示す。

#### 【0028】

半導体製造設備からの排ガスとして供給される含PFCガスは、弁V2により供給量が調節され、窒素ガス等の希釈ガスの供給量を弁V1により調節することで、被処理ガスの総供給量や希釈濃度が調節される。その後、被処理ガスは、予熱器5の管部5aに導入され、反応部2から排出され容器5bに導入された高温ガスと熱交換して、予熱される。

#### 【0029】

反応部 2 は、アルミナ炉芯管などの 1000℃以上の高温でも耐える材質で作製した内筒 2 a と外筒 2 b とを備え、その間に本発明の反応剤 1 を充填・支持してある。反応部 2 の外筒 2 b の周囲には、セラミックヒータなどの電気ヒータを備える加熱手段 4 b が設けられており、また、内筒 2 a の内部には電気ヒータを備える加熱手段 4 a が設けられており、反応剤 1 は加熱手段 4 a と加熱手段 4 b の両者により加熱される。反応剤 1 の各部には、温度制御のためのセラミック保護管付熱電対を設置してある（図示省略）。なお、反応剤 1 を複数段に分けて充填し、下側の反応剤ほど強度が高いものを使用してもよい。

### 【0030】

予熱された被処理ガスは、ガス流通経路 3 a を介して反応部 2 の内筒 2 a に導入され、加熱手段 4 a で反応温度付近まで加熱される。加熱された被処理ガスは、下部のガス流通経路 3 b を経た後、粒状の反応剤 1 と接触しつつ間隙を流通し、分解反応した後、ガス流通経路 3 c を経て排出される。

### 【0031】

排出されたガスは、予熱器 5 を経て、空冷ファンを備える冷却器 6 で適当な温度まで冷却され、排出される。

### 【0032】

なお、窒素ガス希釈、空気希釈による窒素酸化物、フッ化水素などが生成するほか、硫黄酸化物が生成される場合があるため、これらの分解生成物を除去するために、反応部 2 の後段に処理塔を設置してもよい。

### 【0033】

また、反応部 2 を 2 基並列に設けて、反応剤 1 の消費状態を反応部 2 の後段に設けたフッ素成分検出手段により検知して、両者の反応部 2 を交互に使用するようにしてもよい。また、フッ素成分検出手段の後段にフッ素成分を除去する吸着部（ソーダライム等）を設けてもよい。

### 【0034】

#### 〔PFC の分解方法〕

本発明の PFC の分解方法は、パーフルオロ化合物を含むガスを固体状の反応剤と加熱下で接触させて、その反応剤にフッ素成分を固定するパーフルオロ化合

物の分解方法において、前記反応剤が前述の如き本発明の反応剤であることを特徴とする。当該反応剤や分解操作、分解装置については前述の通りであるため、以下、分解方法の原料、条件等について説明する。

#### 【0035】

被処理ガスは、パーフルオロ化合物を含むガスであり、パーフルオロ化合物の濃度は、0.1～10vol%程度が好ましい。特に、窒素ガス、希ガス等の不活性ガスで希釈されていることが好ましい。

#### 【0036】

パーフルオロ化合物としては、 $\text{SF}_6$ 、 $\text{CF}_4$ 、 $\text{C}_2\text{F}_6$ 、 $\text{NF}_3$ などが挙げられる。なお、半導体製造設備からの排ガスの場合、同時にフルオロ炭化水素、含塩素フルオロ化合物なども含有される場合があり、本発明の分解方法はこれらに対しても有効である。

#### 【0037】

加熱温度は、含有されるパーフルオロ化合物や他の反応条件によるため、分解率との兼ね合いで適宜決定するのが好ましい。一般的には、500℃以上に加熱するのが好ましく、特に700～800℃で100%に近い分解率を得ることができる。なお、 $\text{NF}_3$ の場合には、250℃以上で分解が可能である。

#### 【0038】

被処理ガスのガス流量は、例えば200gの反応剤に対して2～10L/min程度が好ましく、また、空間速度100～2000 $\text{hr}^{-1}$ 程度が好ましい。なお、反応剤の充填高さ（見掛け滞留長さ）は50mm以上が好ましく、250mm以上がより好ましい。

#### 【0039】

##### 【実施例】

以下、本発明の構成と効果を具体的に示す実施例等について説明する。

#### 【0040】

##### 実施例1

$\text{CF}_4$ ガスをあらかじめ窒素ガスにて1vol%に希釈した後、反応剤を40g充填した内径50mmの高温処理筒内（反応部）に2L/min（SV=2

40 hr<sup>-1</sup>) にて導入しながら、内蔵ヒーターにて内部温度を約 800℃ に制御しつつ分解反応を行った。その際、反応剤としては、MgO 粉末 5 重量部と Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末 95 重量部とを少量の水分とともに混合して圧縮成形した後、粉碎・分粒した直径約 3 mm の MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系反応剤 (MgO: 5 重量%) を使用した。

#### 【0041】

排出されるガスを非分散型赤外線吸収スペクトル (ND-IR) により測定し、次式により CF<sub>4</sub> の分解率を求めた。

#### 【0042】

分解率 = (供給ガス中 CF<sub>4</sub> 濃度 - 排出ガス中 CF<sub>4</sub> 濃度) / 供給ガス中 CF<sub>4</sub> 濃度 × 100 (%)

その結果、内部温度が 800℃ に到達した時点で分解率は 100.0% となり、150 分間ほど分解率 100.0% を維持した後、徐々に分解率が低下し、190 分後に分解率 90% 以下となった。なお、分解率 100% の状態では、排出ガス中にフッ素ガス等のフッ素成分は殆ど存在しなかった。

#### 【0043】

##### 実施例 2

実施例 1 において、反応剤として、MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系反応剤 (MgO: 1 重量%) を使用する以外は、実施例 1 と同じ条件にて CF<sub>4</sub> ガスの分解を行った。その結果、内部温度が 800℃ に到達した時点で分解率は約 100% となり、120 分後から徐々に分解率が低下し、150 分後に分解率 90% 以下となった。

#### 【0044】

##### 比較例 1

実施例 1 における、MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系反応剤の代わりに、活性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 剤 (住友化学製, NKHD-46HD) を使用する以外は、実施例 1 と同じ条件にて CF<sub>4</sub> ガスの分解を行った。その結果、最高分解率は 100% となったが、排出ガス中にはかなり HF 及び F<sub>2</sub> が検出され、50 分間しか分解率 100% を維持できず、分解率 90% 以上の維持時間も 90 分間であった。

## 【0045】

## 比較例 2

実施例 1 において、反応剤として、Ni-MgO 系反応剤 (MgO : 13.5 重量%、Ni : 38 重量%) を使用する以外は、実施例 1 と同じ条件にて CF<sub>4</sub> ガスの分解を行った。その結果、最高でも分解率は約 20% と低かった。

## 【0046】

## 比較例 3

実施例 1 において、反応剤として、直径約 5 mm の Na<sub>2</sub>O-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系反応剤 (Na<sub>2</sub>O : 1 重量%) を使用する以外は、実施例 1 と同じ条件にて CF<sub>4</sub> ガスの分解を行った。その結果、最高分解率は 100% となったが、30 分間しか分解率 100% を維持できず、分解率 90% 以上の維持時間も 70 分間であった。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図 1】

本発明の分解装置の一例を示す概略構成図

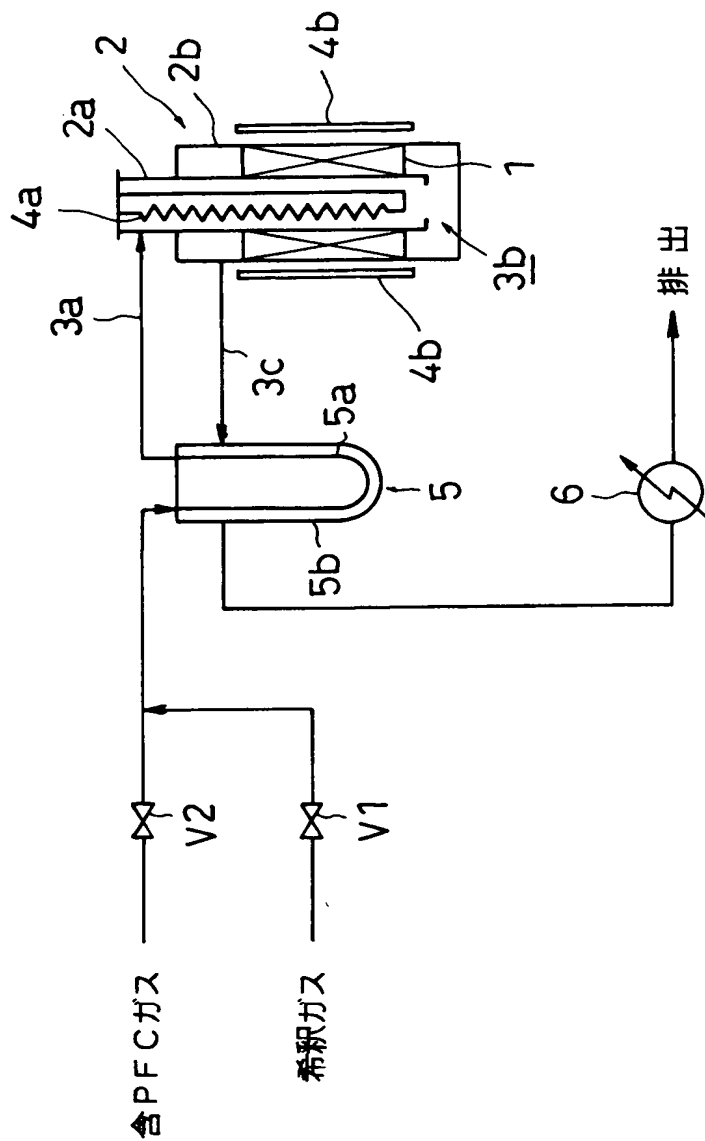
## 【符号の説明】

- 1            反応剤
- 2            反応部
- 3 a ~ 3 c   ガス流通経路
- 4 a, 4 b    加熱手段

【書類名】

図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、P F Cを低温で効率良く、安全に分解処理する分解方法、それに用いる反応剤及びその分解装置を提供する。

【解決手段】 パーフルオロ化合物を含むガスを固体状の反応剤と加熱下で接触させて、その反応剤にフッ素成分を固定するパーフルオロ化合物の分解方法において、前記反応剤が、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有することを特徴とする。

【選択図】 なし



【書類名】 出願人名義変更届（一般承継）

【提出日】 平成15年 2月21日

【あて先】 特許庁長官 殿

【事件の表示】

【出願番号】 特願2000- 30094

【承継人】

【住所又は居所】 東京都江東区東雲一丁目 9 番 1 号

【氏名又は名称】 ジャパン・エア・ガシズ株式会社

【承継人代理人】

【識別番号】 100092266

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴木 崇生

【電話番号】 06-6838-0505

【承継人代理人】

【識別番号】 100104422

【弁理士】

【氏名又は名称】 梶崎 弘一

【電話番号】 06-6838-0505

【承継人代理人】

【識別番号】 100105717

【弁理士】

【氏名又は名称】 尾崎 雄三

【電話番号】 06-6838-0505

【承継人代理人】

【識別番号】 100104101

【弁理士】

【氏名又は名称】 谷口 俊彦

【電話番号】 06-6838-0505

**【提出物件の目録】**

|         |                   |   |
|---------|-------------------|---|
| 【物件名】   | 履歴事項全部証明書（承継人）    | 1 |
| 【物件名】   | 履歴事項全部証明書（被承継人）   | 1 |
| 【物件名】   | 閉鎖事項全部証明書（承継人）    | 1 |
| 【物件名】   | 承継証明書             | 1 |
| 【物件名】   | 包括委任状             | 1 |
| 【援用の表示】 | 同日付提出の包括委任状を援用する。 |   |

## 履歴事項全部証明書

(B)20300340345



東京都江東区東雲一丁目9番1号  
 ジャパン・エア・ガズ株式会社  
 会社法人等番号 0106-01-029087

(B)20300340359



|                  |  |               |
|------------------|--|---------------|
| 商号               | ジャパン・エア・ガズ株式会社   |               |
| 本店               | 東京都江東区東雲一丁目9番1号  |               |
| 公告をする方法          | 当会社の公告は官報に掲載する   |               |
| 会社成立の年月日         | 昭和9年5月26日  |               |
| 目的               | 1. 酸素、窒素、アルゴンその他各種圧縮又は液化ガスの製造販売ならびに輸出入<br>2. 各種溶接、切断用機器、材料及び冷暖房機の製造販売<br>3. 計量器の製造販売<br>4. ガス液化装置及び各種ガス関連機械器具の製造販売<br>5. 集塵及びガス清浄装置の製造販売<br>6. 化学機器及び装置の製造販売ならびに輸出入<br>7. 航空機用機械器具、各種測定器の製造販売ならびに輸出入<br>8. 医薬品、毒物、劇物、医薬部外品、化粧品、医療用外各種薬品類及び医療用具の製造販売ならびに輸出入<br>9. 管工事、機械器具設置工事、水道施設工事、清掃施設工事及び建築工事等建設工事の設計、施工ならびに請負<br>10. 不動産の賃貸借<br>11. 電気供給業及び蒸気、温水、冷水その他の熱供給に関する事業<br>12. 前各号に付帯関連する一切の業務のほか経営上必要と認める他事業への投融資 |               |
| 発行する株式の総数        | 2億4879万7472株   |               |
| 発行済株式の総数並びに種類及び数 | 発行済株式の総数<br>2億4879万7472株   |               |
| 資本の額             | 金105億905万8791円   |               |
| 株式の譲渡制限に関する規定    | 当会社の株式の譲渡については、取締役会の承認を要する   |               |
| 役員に関する事項         | 取締役 下 畑 豊 文  | 平成13年12月20日重任 |
|                  | 取締役 コリン・ケネディ   | 平成15年 1月 6日就任 |

整理番号 4014565

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

1/4

東京都江東区東雲一丁目9番1号  
 ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
 会社法人等番号 0106-01-029087

|     |                  |                |
|-----|------------------|----------------|
| 取締役 | ロドリック・ヒュー・デューク   | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 6日辞任  |
| 取締役 | 佐藤 康夫            | 平成15年 1月 15日登記 |
|     |                  | 平成15年 1月 6日就任  |
| 取締役 | ギィ・サルスゲベール       | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |
| 取締役 | スーザン・ロバートソン      | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |
| 取締役 | 升田 博治            | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |
| 取締役 | 濱口 博二            | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |
| 取締役 | 岩崎 敏信            | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |
| 取締役 | ベルトラン・ナロー        | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |
| 取締役 | ジョン・ビバン          | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |
| 取締役 | ジョン・グレン          | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |
| 取締役 | クリシュナムルシー・ラジャゴパル | 平成15年 1月 6日就任  |
|     |                  | 平成15年 1月 15日登記 |

整理番号 1014565

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

2/4

東京都江東区東雲一丁目9番1号  
 ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
 会社法人等番号 0106-01-029087

|            |   |               |
|------------|---|---------------|
|            | 東京都多摩市鶴牧四丁目6番地2-202<br>代表取締役 下 畑 豊 文            | 平成13年12月20日重任 |
|            |   |               |
|            |   | 平成15年 1月 6日辞任 |
|            |   | 平成15年 1月15日登記 |
|            | 東京都新宿区信濃町22番地1ホームットプレミア310号<br>代表取締役 ギィ・サルスゲベール | 平成15年 1月 6日就任 |
|            |   | 平成15年 1月15日登記 |
|            | 監査役 小 泉 美 昌                                     | 平成13年12月20日重任 |
|            |   |               |
|            | 監査役 金 子 弘                                       | 平成12年12月21日重任 |
|            |   |               |
|            |   | 平成15年 1月 6日辞任 |
|            |   | 平成15年 1月15日登記 |
|            | 監査役 河 合 良 幸                                     | 平成12年12月21日重任 |
|            |   |               |
|            | 監査役 太 田 榮 次                                     | 平成12年12月21日就任 |
|            |   |               |
|            |   | 平成15年 1月 6日辞任 |
| 登記記録に関する事項 |   | 平成15年 1月15日登記 |
|            | 監査役 前 神 由 刀                                     | 平成15年 1月 6日就任 |
|            |   | 平成15年 1月15日登記 |
|            | 監査役 秋 山 純 一                                     | 平成15年 1月 6日就任 |
|            |   | 平成15年 1月15日登記 |
|            | 平成15年1月6日大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビルから本店移転       | 平成15年 1月14日登記 |

整理番号 1014565

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

3/4

東京都江東区東雲一丁目9番1号  
ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
会社法人等番号 0106-01-029087

これは登記簿に記録されている閉鎖されていない事項の全部であることを証明  
した書面である。

平成15年 1月23日  
東京法務局墨田出張所  
登記官

小 野 寺 毅



整理番号 1014565

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

4/4

## 履歴事項全部証明書

東京都江東区東雲一丁目9番1号  
 日本エア・リキード株式会社  
 会社法人等番号 0106-01-026531

(B)20300340345



(B)20300340359



|          |  |
|----------|--|
| 商号       | 日本エア・リキード株式会社  |
| 本店       | 東京都江東区東雲一丁目9番1号  |
| 公告をする方法  | 日本経済新聞に掲載する  |
| 会社成立の年月日 | 昭和5年8月8日   |
| 目的       | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 形状並びに出所の区別なく、諸形態の冷気及び液体空気の工業的生産、その応用又は利用、諸ガス主として酸素及び窒素の生産及び液化、その応用又は利用</li> <li>2. 前号の目的に直接又は間接に関係ある諸製品、その製造或は使用より生ずる諸副産品及び前記製品並びに副産品の利用又は応用に供する諸機械器具の購入、製造、販売及び利用。特に純粋混合又は化合の形態における酸素並びに窒素の利用により誘導せられ又はその利用の結果生ずる諸製品、金属又は合金、主として酸素或は窒素含有の諸製品の購入、製造、販売及び利用</li> <li>3. 方式の如何を問わず、金属の溶接並びに切断に直接又は間接に関係ある一切の機械、器具、材料及び附属品の購入、製造、販売及び利用</li> <li>4. ガス液化装置の製造並びに販売</li> <li>5. 集塵及びガス清浄装置の製造及び販売</li> <li>6. 医薬品、医薬部外品、化粧品、医療用外各種薬品類及び医療用具の購入、製造及び販売</li> <li>7. 毒物及び劇物の購入、製造及び販売</li> <li>8. 管工事及び機械器具設置工事の設計、施工及び請負</li> <li>9. 前各号の目的に、直接又は間接に関係ある工業、商業、不動産、動産及び金融上の一切の事業</li> <li>10. 不動産並びに第1号乃至第7号の目的に関係ある化学機器、高圧ガス容器、工作機械及び車輛の賃貸業</li> <li>11. 前各号の外次の事業               <ol style="list-style-type: none"> <li>イ・各種商行為特に取次販売業、代理業及び仲立業</li> <li>ロ・直接又は仲介による技術援助</li> <li>ハ・他事業への参加及び投資</li> </ol> </li> </ol> |
|          | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 形状並びに出所の区別なく、諸形態の冷気及び液体空気の工業的生産、その応用又は利用、諸ガス主として酸素及び窒素の生産及び液化、その応用又は利用</li> <li>2. 前号の目的に直接又は間接に関係ある諸製品、その製造或は使用より生ずる諸副産品及び前記製品並びに副産品の利用又は応用に供する諸機械器具の購入、製造、販売及び利用。特に純粋混合又は化合の形態における酸素並びに窒素の利用により誘導せられ又はその利用の結果生ずる諸製品、金属又は合金、主として酸素或は窒素含有の諸製品の購入、製造、販売及び利用</li> <li>3. 方式の如何を問わず、金属の溶接並びに切断に直接又は間接に関係ある一切の機械、器具、材料及び附属品の購入、製造、販売及び利用</li> </ol>  |

整理番号 4018344

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

1/7

東京都江東区東雲一丁目9番1号  
 日本エア・リキード株式会社  
 会社法人等番号 0106-01-026531

|                      |  |               |
|----------------------|--|---------------|
|                      | 4. ガス液化装置の製造並びに販売<br>5. 集塵及びガス清浄装置の製造及び販売<br>6. 医薬品、医薬部外品、化粧品、医療用外各種薬品類及び医療用具の購入、製造及び販売<br>7. 毒物及び劇物の購入、製造及び販売<br>8. 管工事及び機械器具設置工事の設計、施工及び請負<br>9. 前各号の目的に、直接又は間接に関係ある工業、商業、不動産、動産及び金融上の一切の事業<br>10. 不動産並びに第1号乃至第7号の目的に関係ある化学機器、高圧ガス容器、工作機械及び車輛の賃貸業<br>11. 電気供給業及び蒸気、温水、冷水その他の熱供給に関する事業<br>12. 前各号の外次の事業<br>イ・各種商行為特に取次販売業、代理業及び仲立業<br>ロ・直接又は仲介による技術援助<br>ハ・他事業への参加及び投資<br>平成14年 3月28日変更 平成14年 4月 5日登記 |               |
| 額面株式1株の金額            | 金50円   |               |
| 一単元の株式の数             | 1000株  |               |
| 発行する株式の総数            | 3億9998万6000株   |               |
| 発行済株式の総数並びに種類及び数     | 発行済株式の総数<br>1億2493万6000株   |               |
| 資本の額                 | 金62億4750万円   |               |
| 名義書換代理人の氏名及び住所並びに営業所 | 大阪府中央区北浜四丁目5番33号<br>住友信託銀行株式会社<br>東京都千代田区丸の内一丁目4番4号<br>住友信託銀行株式会社 証券代行部  |               |
| 役員に関する事項             | 取締役 佐藤 康 夫   | 平成11年 3月30日重任 |
|                      |  |               |
|                      | 取締役 佐藤 康 夫   | 平成13年 3月29日重任 |
|                      |  | 平成13年 4月10日登記 |
|                      |  | 平成15年 1月 5日辞任 |
|                      |  | 平成15年 1月15日登記 |

整理番号 1018344

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

2/7



東京都江東区東雲一丁目9番1号  
 日本エア・リキード株式会社  
 会社法人等番号 0106-01-026531

|  |            |                  |               |
|--|------------|------------------|---------------|
|  | <u>取締役</u> | <u>神 奈 川 雅 彦</u> | 平成11年 3月30日重任 |
|  |            |                  |               |
|  |            |                  | 平成12年 3月30日辞任 |
|  | <u>取締役</u> | <u>林 雅 信</u>     | 平成12年 4月12日登記 |
|  |            |                  | 平成11年 3月30日重任 |
|  |            |                  |               |
|  |            |                  | 平成12年 3月30日辞任 |
|  | <u>取締役</u> | <u>御 手 洗 功</u>   | 平成12年 4月12日登記 |
|  |            |                  | 平成11年 3月30日重任 |
|  |            |                  |               |
|  |            |                  | 平成12年 8月31日辞任 |
|  | <u>取締役</u> | <u>升 田 博 治</u>   | 平成12年 9月11日登記 |
|  |            |                  | 平成11年 3月30日重任 |
|  |            |                  |               |
|  | <u>取締役</u> | <u>升 田 博 治</u>   | 平成13年 3月29日重任 |
|  |            |                  | 平成13年 4月10日登記 |
|  |            |                  | 平成15年 1月 5日辞任 |
|  |            |                  | 平成15年 1月15日登記 |
|  | <u>取締役</u> | <u>稲 森 一 彦</u>   | 平成11年 3月30日重任 |
|  |            |                  |               |
|  |            |                  | 平成11年12月22日辞任 |
|  |            |                  | 平成12年 1月11日登記 |
|  |            |                  | 平成11年12月31日辞任 |
|  |            |                  | 平成12年 1月20日更正 |

整理番号 イ018344

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

3/7

東京都江東区東雲一丁目9番1号  
 日本エア・リキード株式会社  
 会社法人等番号 0106-01-026531

|  |                         |               |
|--|-------------------------|---------------|
|  | <u>取締役</u> 貝 沼 潮        | 平成11年 3月30日重任 |
|  |                         |               |
|  |                         | 平成12年 8月31日辞任 |
|  | <u>取締役</u> 西 村 功        | 平成12年 9月11日登記 |
|  |                         | 平成11年 3月30日重任 |
|  |                         |               |
|  | <u>取締役</u> 西 村 功        | 平成13年 3月29日重任 |
|  |                         | 平成13年 4月10日登記 |
|  |                         | 平成14年 3月28日辞任 |
|  |                         | 平成14年 4月 5日登記 |
|  | <u>取締役</u> ジャン・ポール・デロルム | 平成11年 3月30日重任 |
|  |                         |               |
|  |                         | 平成12年 4月30日辞任 |
|  | <u>取締役</u> ジェラルド・レビ     | 平成12年 5月11日登記 |
|  |                         | 平成11年 3月30日重任 |
|  |                         |               |
|  | <u>取締役</u> ジャン・クロード・ブオノ | 平成13年 3月29日退任 |
|  |                         | 平成13年 4月10日登記 |
|  |                         | 平成11年 3月30日重任 |
|  | <u>取締役</u> ジャン・クロード・ブオノ |               |
|  |                         | 平成13年 3月29日重任 |
|  |                         | 平成13年 4月10日登記 |
|  | <u>取締役</u> イヴ・リヨンカーン    | 平成11年 3月30日重任 |
|  |                         |               |
|  |                         | 平成12年 8月 4日辞任 |
|  |                         | 平成12年 8月21日登記 |

整理番号 1018344

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

4/7

東京都江東区東雲一丁目9番1号

日本エア・リキード株式会社

会社法人等番号 0106-01-026531

|  |     |                    |               |
|--|-----|--------------------|---------------|
|  | 取締役 | <u>クリスチャン・ゲリトー</u> | 平成11年 3月30日重任 |
|  |     |                    |               |
|  |     |                    | 平成12年 8月31日辞任 |
|  |     |                    | 平成12年 9月11日登記 |
|  | 取締役 | <u>ブノワ・ボチエ</u>     | 平成11年 3月30日重任 |
|  |     |                    |               |
|  | 取締役 | <u>ブノワ・ボチエ</u>     | 平成13年 3月29日重任 |
|  |     |                    | 平成13年 4月10日登記 |
|  | 取締役 | <u>コリン・ケネディ</u>    | 平成11年 3月30日就任 |
|  |     |                    |               |
|  |     |                    | 平成13年 3月29日重任 |
|  |     |                    | 平成13年 4月10日登記 |
|  | 取締役 | <u>ミッシェル・マドサック</u> | 平成11年 3月30日就任 |
|  |     |                    |               |
|  |     |                    | 平成13年 3月29日重任 |
|  |     |                    | 平成13年 4月10日登記 |
|  |     |                    | 平成14年 3月28日辞任 |
|  |     |                    | 平成14年 4月 5日登記 |
|  | 取締役 | <u>渡辺 光 正</u>      | 平成11年 3月30日就任 |
|  |     |                    |               |
|  |     |                    | 平成13年 3月29日重任 |
|  |     |                    | 平成13年 4月10日登記 |
|  | 取締役 | <u>ディディエ・ボワリエ</u>  | 平成12年 3月30日就任 |
|  |     |                    | 平成12年 4月12日登記 |
|  |     |                    | 平成13年 3月29日重任 |
|  |     |                    | 平成13年 4月10日登記 |

整理番号 1018344

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

5/7

東京都江東区東雲一丁目9番1号  
 日本エア・リキード株式会社  
 会社法人等番号 0106-01-026531

|  |  |               |
|--|--|---------------|
|  | <u>取締役</u> 當 谷 紀 明   | 平成14年 3月28日就任 |
|  |  | 平成14年 4月 5日登記 |
|  |  | 平成15年 1月 5日辞任 |
|  |  | 平成15年 1月15日登記 |
|  | <u>取締役</u> クリスチャン・ゲリトー   | 平成14年 3月28日就任 |
|  |  | 平成14年 4月 5日登記 |
|  |  | 平成15年 1月 5日辞任 |
|  |  | 平成15年 1月15日登記 |
|  | <u>東京都文京区春日一丁目11番4号春日フラッグ</u><br><u>代表取締役</u> 佐 藤 康 夫<br><u>東京都文京区春日一丁目11番4号春日フラッグ</u><br><u>代表取締役</u> 佐 藤 康 夫                   | 平成11年 3月30日重任 |
|  |  |               |
|  |  | 平成13年 3月29日重任 |
|  |  | 平成13年 4月10日登記 |
|  |  | 平成15年 1月 5日退任 |
|  |  | 平成15年 1月15日登記 |
|  | <u>東京都港区元麻布三丁目8番43号アルファコート元麻布401号</u><br><u>代表取締役</u> コリン・ケネディ<br><u>東京都港区元麻布三丁目8番43号アルファコート元麻布401号</u><br><u>代表取締役</u> コリン・ケネディ | 平成11年 3月30日就任 |
|  |  |               |
|  |  | 平成13年 3月29日重任 |
|  |  | 平成13年 4月10日登記 |
|  | <u>監査役</u> 米 田 勝 彦   | 平成10年 3月27日重任 |
|  |  |               |
|  |  | 平成12年 3月30日辞任 |
|  | <u>監査役</u> 新 川 政 次 郎   | 平成12年 4月12日登記 |
|  |  |               |
|  |  | 平成10年 3月27日重任 |
|  |  |               |
|  |  | 平成13年 3月29日退任 |
|  |  | 平成13年 4月10日登記 |

整理番号 1018344

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

6/7

東京都江東区東雲一丁目9番1号  
日本エア・リキード株式会社  
会社法人等番号 0106-01-026531

|            |   |               |
|------------|---|---------------|
|            | 監査役 高 橋 勲   | 平成10年 3月27日重任 |
|            | 監査役 高 橋 勲   | 平成13年 3月29日重任 |
|            |   | 平成13年 4月10日登記 |
|            | 監査役 半 田 初 大 郎   | 平成10年 3月27日就任 |
|            |   | 平成13年 3月29日退任 |
|            |   | 平成13年 4月10日登記 |
|            | 監査役 前 神 由 刀   | 平成13年 3月29日就任 |
|            |   | 平成13年 4月10日登記 |
|            |   | 平成15年 1月 5日辞任 |
|            |   | 平成15年 1月15日登記 |
|            | 監査役 河 村 暢 英   | 平成13年 3月29日就任 |
|            |   | 平成13年 4月10日登記 |
| 会社分割       | 平成15年1月6日大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビル<br>ジャパン・エア・ガシズ株式会社に分割 | 平成15年 1月14日登記 |
|            |   |               |
| 吸収合併       | 兵庫県加古郡播磨町新島16番日本エア・リキードサービス株式会社を合併                        | 平成13年 7月 2日登記 |
| 登記記録に関する事項 | 平成11年10月1日東京都港区虎ノ門一丁目15番12号(日本瓦斯協会ビル内)から本店移転              | 平成11年10月 7日登記 |

これは登記簿に記録されている閉鎖されていない事項の全部であることを証明した書面である。

平成15年 1月30日  
東京法務局墨田出張所  
登記官

小 野 寺 毅



整理番号 1018344

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

(B)20300340345



## 閉鎖事項全部証明書

大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビル  
 ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
 会社法人等番号 1299-01-059548

(B)20300340359



|          |   |               |
|----------|---|---------------|
| 商号       | 大阪酸素工業株式会社  |               |
|          | ジャパン・エア・ガシズ株式会社   | 平成15年 1月 6日登記 |
| 本店       | 大阪市西淀川区歌島二丁目12番4号   |               |
|          | 大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビル  | 昭和61年 7月 7日移転 |
| 公告をする方法  | 当社の公告は大阪市および東京都において発行する産経新聞に掲載する  |               |
|          | 当社の公告は官報に掲載する   | 平成15年 1月 6日登記 |
| 会社成立の年月日 | 昭和9年5月26日   |               |
| 目的       | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 酸素、窒素、アルゴンその他各種圧縮または液化ガスの製造販売ならびに輸出入</li> <li>2. 各種溶接、切断用機器、材料および冷暖房機その他各種機械器具の製造販売</li> <li>3. 計量器の製造販売</li> <li>4. 化学機器および装置の製造販売ならびに輸出入</li> <li>5. 航空機用機械器具、各種測定器の製造販売ならびに輸出入</li> <li>6. 医薬品、毒物、劇物、医療用具の製造販売ならびに輸出入</li> <li>7. 管工事、機械器具設置工事、水道施設工事、清掃施設工事および建築工事等建設工事の設計、施工ならびに請負</li> <li>8. 不動産の賃貸借</li> <li>9. 前各号に付帯関連する一切の業務のほか経営上必要と認める他事業への投資</li> </ol> |               |

整理番号 ツ928579

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

1/7

大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビル  
 ジャパン・エア・ガズ株式会社  
 会社法人等番号 1299-01-059548

|                              |  |                                     |
|------------------------------|--|-------------------------------------|
|                              | 等建設工事の設計、施工ならびに請負<br>10. 不動産の賃貸借<br>11. 電気供給業及び蒸気、温水、冷水その他の熱供給に関する事業<br>12. 前各号に付帯関連する一切の業務のほか経営上必要と認める他事業への<br>投融資<br>平成15年 1月 6日登記 |                                     |
| 額面株式1株の金額                    | 金50円   |                                     |
| 一単元の株式の数                     | 1000株  | 平成15年 1月 6日廃止<br>平成15年 1月 6日登記      |
| 発行する株式の総数                    | 1億8768万200株  |                                     |
|                              | 2億4879万7472株   | 平成15年 1月 6日登記                       |
| 発行済株式の総数<br>並びに種類及び数         | 発行済株式の総数<br>1億1195万8862株   |                                     |
|                              | 発行済株式の総数<br>2億4879万7472株   | 平成15年 1月 6日登記                       |
| 資本の額                         | 金105億905万8791円   |                                     |
| 株式の譲渡制限に関する規定                | 当会社の株式の譲渡については、取締役会の承認を要する<br>平成15年 1月 6日登記  |                                     |
| 名義書換代理人の<br>氏名及び住所並び<br>に営業所 | 東京都千代田区永田町二丁目11番1号<br>三菱信託銀行株式会社<br>東京都千代田区永田町二丁目11番1号<br>三菱信託銀行株式会社証券代行部  |                                     |
|                              | 平成14年 8月31日名義<br>書換代理人三菱信託銀行株式<br>会社を廃止<br>平成14年 9月12日登記   |                                     |
| 役員に関する事項                     | 取締役  | ロドリック・ヒュー・デュー<br>2<br>平成11年12月21日重任 |

整理番号 ツ928579

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

2/7

大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビル  
 ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
 会社法人等番号 1299-01-059548

|  |            |                       |               |
|--|------------|-----------------------|---------------|
|  | <u>取締役</u> | <u>ロドリック・ヒュー・デューク</u> | 平成13年12月20日重任 |
|  |            |                       | 平成13年12月27日登記 |
|  |            |                       | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |            |                       | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | <u>取締役</u> | <u>下 畑 豊 文</u>        | 平成11年12月21日重任 |
|  |            |                       |               |
|  | <u>取締役</u> | <u>下 畑 豊 文</u>        | 平成13年12月20日重任 |
|  |            |                       | 平成13年12月27日登記 |
|  | <u>取締役</u> | <u>内 橋 守</u>          | 平成11年12月21日重任 |
|  |            |                       |               |
|  |            |                       | 平成13年12月20日重任 |
|  |            |                       | 平成13年12月27日登記 |
|  | <u>取締役</u> | <u>内 橋 守</u>          | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |            |                       | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | <u>取締役</u> | <u>鈴 木 徳 彦</u>        | 平成11年12月21日重任 |
|  |            |                       |               |
|  |            |                       | 平成13年12月20日重任 |
|  |            |                       | 平成13年12月27日登記 |
|  | <u>取締役</u> | <u>鈴 木 徳 彦</u>        | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |            |                       | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | <u>取締役</u> | <u>三 浦 俊 樹</u>        | 平成11年12月21日重任 |
|  |            |                       |               |
|  |            |                       | 平成13年12月20日重任 |
|  |            |                       | 平成13年12月27日登記 |
|  | <u>取締役</u> | <u>三 浦 俊 樹</u>        | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |            |                       | 平成15年 1月 6日登記 |

整理番号 ツ928579

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

3/7



大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビル  
 ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
 会社法人等番号 1299-01-059548

|  |                                       |               |
|--|---------------------------------------|---------------|
|  | <u>取締役</u> <u>濱口博二</u>                | 平成11年12月21日重任 |
|  |                                       |               |
|  | <u>取締役</u> <u>濱口博二</u>                | 平成13年12月20日重任 |
|  |                                       | 平成13年12月27日登記 |
|  |                                       | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |                                       | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | <u>取締役</u> <u>幸田博雅</u>                | 平成11年12月21日重任 |
|  |                                       |               |
|  |                                       | 平成12年12月21日辞任 |
|  | <u>取締役</u> <u>クリストファー・エドワード・ドライデン</u> | 平成12年12月26日登記 |
|  |                                       | 平成11年12月21日重任 |
|  |                                       |               |
|  | <u>取締役</u> <u>クリストファー・エドワード・ドライデン</u> | 平成13年12月20日退任 |
|  |                                       | 平成13年12月27日登記 |
|  |                                       |               |
|  | <u>取締役</u> <u>奥林茂</u>                 | 平成11年12月21日重任 |
|  |                                       |               |
|  |                                       | 平成12年12月21日辞任 |
|  | <u>取締役</u> <u>奥林茂</u>                 | 平成12年12月26日登記 |
|  |                                       |               |
|  |                                       | 平成12年12月21日辞任 |
|  | <u>取締役</u> <u>黒坂純</u>                 | 平成12年12月26日登記 |
|  |                                       |               |
|  |                                       | 平成11年12月21日重任 |
|  | <u>取締役</u> <u>黒坂純</u>                 |               |
|  |                                       | 平成12年12月21日辞任 |
|  |                                       | 平成12年12月26日登記 |
|  | <u>取締役</u> <u>林谷英司</u>                | 平成11年12月21日重任 |
|  |                                       |               |
|  |                                       | 平成12年12月21日辞任 |
|  | <u>取締役</u> <u>林谷英司</u>                | 平成12年12月26日登記 |
|  |                                       |               |

整理番号 ツ928579

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

4/7

大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビル  
 ジャパン・エア・ガズ株式会社  
 会社法人等番号 1299-01-059548

|  |                             |               |
|--|-----------------------------|---------------|
|  | <u>取締役</u> 林 茂 樹            | 平成11年12月21日重任 |
|  |                             |               |
|  |                             | 平成12年12月21日辞任 |
|  | <u>取締役</u> ヒュー・パウエル・ケアレス    | 平成12年12月26日登記 |
|  |                             |               |
|  |                             | 平成11年12月21日重任 |
|  | <u>取締役</u> ジョン・アンドリュース・ビバン  | 平成12年12月21日就任 |
|  |                             | 平成12年12月26日登記 |
|  |                             |               |
|  | <u>取締役</u> ジョン・アンドリュース・ビバン  | 平成13年12月20日重任 |
|  |                             | 平成13年12月27日登記 |
|  |                             |               |
|  | <u>取締役</u> クリシュナムルシー・ラジャゴバル | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |                             | 平成15年 1月 6日登記 |
|  |                             |               |
|  | <u>取締役</u> クリシュナムルシー・ラジャゴバル | 平成12年12月21日就任 |
|  |                             | 平成12年12月26日登記 |
|  |                             |               |
|  | <u>取締役</u> グレゴリー・レオ・セドウィック  | 平成13年12月20日重任 |
|  |                             | 平成13年12月27日登記 |
|  |                             |               |
|  | <u>取締役</u> ビーター・オーウェン       | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |                             | 平成15年 1月 6日登記 |
|  |                             |               |
|  | <u>取締役</u> ビーター・オーウェン       | 平成12年12月21日就任 |
|  |                             | 平成12年12月26日登記 |
|  |                             |               |
|  | <u>取締役</u> ビーター・オーウェン       | 平成13年12月20日退任 |
|  |                             | 平成13年12月27日登記 |
|  |                             |               |
|  | <u>取締役</u> ビーター・オーウェン       | 平成13年12月20日就任 |
|  |                             | 平成13年12月27日登記 |
|  |                             |               |

整理番号 ツ928579

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

5/7

大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪ビル  
 ジャパン・エア・ガズ株式会社  
 会社法人等番号 1299-01-059548

|  |  |               |
|--|--|---------------|
|  |  | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |  | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | 取締役 <u>スーザン・メアリー・ロバートソン</u>                                      | 平成13年12月20日就任 |
|  |  | 平成13年12月27日登記 |
|  |  | 平成15年 1月 6日辞任 |
|  |  | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | 取締役 コリン・ケネディ   | 平成15年 1月 6日就任 |
|  |  | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | 取締役 ロドリック・ヒュー・デューク   | 平成15年 1月 6日就任 |
|  |  | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | 取締役 佐 藤 康 夫  | 平成15年 1月 6日就任 |
|  |  | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | <u>兵庫県神戸市灘区篠原北町三丁目14番12-1201号</u><br>代表取締役 <u>ロドリック・ヒュー・デューク</u> | 平成11年12月21日重任 |
|  |  |               |
|  |  | 平成13年12月20日重任 |
|  |  | 平成13年12月27日登記 |
|  | <u>兵庫県神戸市灘区篠原北町三丁目14番12-1201号</u><br>代表取締役 <u>ロドリック・ヒュー・デューク</u> | 平成15年 1月 6日退任 |
|  |  | 平成15年 1月 6日登記 |
|  | <u>東京都多摩市鶴牧四丁目6番地2-202</u><br>代表取締役 <u>下 畑 豊 文</u>               | 平成11年12月21日就任 |
|  |  |               |
|  |  | 平成13年12月20日重任 |
|  |  | 平成13年12月27日登記 |
|  | 監査役 小 泉 美 昌  | 平成10年12月18日就任 |
|  |  |               |

整理番号 ツ928579

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

6/7

大阪市淀川区宮原四丁目1番14号住友生命新大阪北ビル  
 ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
 会社法人等番号 1299-01-059548

|            |   |         |               |
|------------|---|---------|---------------|
|            | 監査役   | 小 泉 美 昌 | 平成13年12月20日重任 |
|            |   |         | 平成13年12月27日登記 |
|            | 監査役   | 金 子 弘   | 平成 9年12月19日就任 |
|            |   |         |               |
|            | 監査役   | 金 子 弘   | 平成12年12月21日重任 |
|            |   |         | 平成12年12月26日登記 |
|            | 監査役   | 川 口 壽 一 | 平成 9年12月19日就任 |
|            |   |         |               |
|            |   |         | 平成12年12月21日退任 |
|            |   |         | 平成12年12月26日登記 |
|            | 監査役   | 河 合 良 幸 | 平成 9年12月19日就任 |
|            |   |         |               |
|            | 監査役   | 河 合 良 幸 | 平成12年12月21日重任 |
|            |   |         | 平成12年12月26日登記 |
|            | 監査役   | 太 田 榮 次 | 平成12年12月21日就任 |
|            |   |         | 平成12年12月26日登記 |
| 会社分割       | 東京都江東区東雲一丁目9番1号日本エア・リキード株式会社から分割<br>平成15年 1月 6日登記               |         |               |
| 登記記録に関する事項 | 平成元年法務省令第15号附則第3項の規定により<br>平成12年 4月20日移記                        |         |               |
|            | 平成15年1月6日東京都江東区東雲一丁目9番1号に本店移転<br>平成15年 1月21日登記<br>平成15年 1月21日閉鎖 |         |               |

これは登記簿に記録されている閉鎖された事項の全部であることを証明した書面である。

平成15年 1月23日

大阪法務局  
登記官

山 本 茂



整理番号 ツ928579

\* 下線のあるものは抹消事項であることを示す。

7/7

(B)20300340345



## 承 継 証 明 書

(B)20300340359



平成 15 年 / 月 5 日

承 継 人

住 所 東京都江東区東雲一丁目 9 番 1 号

名 称 ジャパン・エア・ガシズ株式会社

代表者 ギィ・サルズバール 様

弊社分割により、別紙の特許を受ける権利を今般貴社に承継  
したことに相違ありません。

被 承 継 人

住 所 東京都江東区東雲一丁目 9 番 1 号

名 称 日本エア・リキード株式会社

代表者 取締役社長 佐藤康夫



2

(別紙)

平成 11 年特許願第 021275 号  
平成 11 年特許願第 241269 号  
平成 11 年特許願第 281755 号  
平成 11 年特許願第 290139 号  
特願 2000-25331  
特願 2000-30094  
特願 2000-79387  
特願 2000-137968  
特願 2000-212394  
特願 2000-232742  
特願 2000-243530  
特願 2000-371170  
特願 2001-68179  
特願 2001-117000  
特願 2002-5790



## 認定・付加情報

特許出願の番号 特願 2000-030094  
受付番号 20300340350  
書類名 出願人名義変更届 (一般承継)  
担当官 西村 明夫 2206  
作成日 平成15年 4月15日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【承継人】

【識別番号】 000205513

【住所又は居所】 東京都江東区東雲一丁目9番1号

【氏名又は名称】 ジャパン・エア・ガシズ株式会社

【承継人代理人】 申請人

【識別番号】 100092266

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島7丁目1番20号 第  
1スエヒロビル ユニ阿斯国際特許事務所

【氏名又は名称】 鈴木 崇生

【承継人代理人】 申請人

【識別番号】 100104422

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島7丁目1番20号 第  
1スエヒロビル ユニ阿斯国際特許事務所

【氏名又は名称】 梶崎 弘一

【承継人代理人】 申請人

【識別番号】 100105717

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島7丁目1番20号 第  
1スエヒロビル ユニ阿斯国際特許事務所

【氏名又は名称】 尾崎 雄三

【承継人代理人】 申請人

【識別番号】 100104101

【住所又は居所】 大阪市淀川区西中島7丁目1番20号 第1スエ  
ヒロビル ユニ阿斯国際特許事務所

【氏名又は名称】 谷口 俊彦

## 【提出された物件の記事】

【提出物件名】 履歴事項全部証明書 (承継人) 1

履歴事項全部証明書 (被承継人) 1

閉鎖事項全部証明書 (承継人) 1

次頁有

認定・付加情報（続き）

承継証明書 1

次頁無



特願 2 0 0 0 - 0 3 0 0 9 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 1 0 9 4 2 8 ]

- |           |                       |
|-----------|-----------------------|
| 1 . 変更年月日 | 1 9 9 9 年 1 0 月 2 0 日 |
| [変更理由]    | 住所変更                  |
| 住    所    | 東京都江東区東雲 1 丁目 9 番 1 号 |
| 氏    名    | 日本エア・リキード株式会社         |
|           |                       |
| 2 . 変更年月日 | 2 0 0 3 年   7 月 2 9 日 |
| [変更理由]    | 住所変更                  |
| 住    所    | 東京都港区六本木一丁目 6 番 1 号   |
| 氏    名    | 日本エア・リキード株式会社         |

特願 2 0 0 0 - 0 3 0 0 9 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 2 0 5 5 1 3 ]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 2 9 日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 大阪府大阪市淀川区宮原 4 丁目 1 番 1 4 号 住友生命新大阪北ビル  
氏 名 大阪酸素工業株式会社
2. 変更年月日 2 0 0 3 年 1 月 2 9 日  
[変更理由] 住所変更  
住 所 東京都江東区東雲一丁目 9 番 1 号  
氏 名 ジャパン・エア・ガシズ株式会社

## **Certification and Verification of a Translation**

**source document: Japanese Patent Application Number  
2000-030094**

**filing date: 8 February 2000**

**applicant: Air Liquide Japan, Ltd.  
(now: Japan Air Gases Ltd.)**

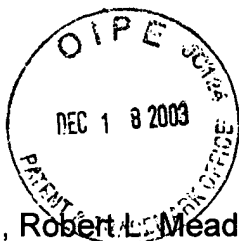
**A copy of the Japanese source document  
is provided after the translation.**

**by  
Robert L. Meadows and  
The R. M. Meadows Company**

**physical address: 11003 Baltus Drive, Austin, Texas 78758 USA  
postal address: P. O. Box 4779, Austin, Texas 78765-4779 USA**

**voice: 512 339 0229  
fax: 512 836 2510**

**email: ROBERTL@meadows.com**



## CERTIFICATION

I, Robert L. Meadows, President of

The R. M. Meadows Company  
P. O. Box 4779, Austin, Texas 78765, USA  
11003 Baltus, Austin, Texas 78758, USA  
(512) 339 0229; 1-800-782 3361

hereby declare

- (1) that The R. M. Meadows Company is a qualified language translation service registered in Travis County, State of Texas, United States of America;
- (2) that a translator thoroughly familiar with the English and Japanese languages has read the below-identified Japanese-language document; and
- (3) that the appended document is, to the best of our knowledge and belief, an accurate and complete translation, from a Certified Copy of the patent application provided by the Japanese Patent Office (Certification No. 2003-3097258 of 25 November 2003), of:

日本特許出願番号2000-030094.....  
Japanese Patent Application Number 2000-030094.....  
発明の名称：パーフルオロ化合物の分解方法及び分解装置.....  
"Method and apparatus for decomposing perfluorocompounds".....  
Applicant: Air Liquide Japan, Ltd.....  
特許出願人：日本エア リキード株式会社.....  
Filed in Japan on 8 February 2000.....

THE STATE OF TEXAS

§  
§  
§

COUNTY OF TRAVIS

BEFORE ME, THE UNDERSIGNED AUTHORITY, on this day personally appeared

Robert L. Meadows (Robert L. Meadows)

known to me to be the person whose name is subscribed to the foregoing instrument, and acknowledged to me that he is an owner and president of the above-named business and that he signed same for the purpose and consideration therein expressed.

GIVEN UNDER MY HAND AND SEAL OF OFFICE, on this 10th day of December 2003.

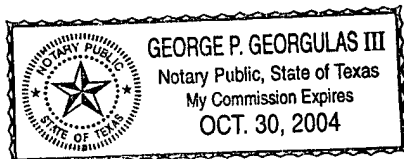
George P. Georgulas III

10 Dec 2003

Notary Public in and for the State of Texas. Commission expires: OCT 30, 2004

Date

(Seal)



## VERIFICATION OF A TRANSLATION

I, the below named translator, hereby declare that:

My name and post office address are as stated below;

That I am knowledgeable in the English language and in the language of the

☐ attached document

☒ below identified document

and I believe the attached English translation to be a true and complete translation of this document to the best of my knowledge and belief.

*(Identification of attached or previously filed document)*

The document for which the attached English translation is being submitted is:

Japanese Patent Application No. 2000-030094 filed on 8 February 2000.

I hereby declare that all statements made herein of my own knowledge are true and that all statements made on information and belief are believed to be true.

Date: 10 December 2003

Full name of the translator Robert L. Meadows

Signature of the translator *RL Meadows*

Post Office Address P. O. Box 4779, Austin, Texas 78765-4779 USA

THE STATE OF TEXAS §

COUNTY OF TRAVIS §

BEFORE ME, THE UNDERSIGNED AUTHORITY, on this day personally appeared

Robert L. Meadows

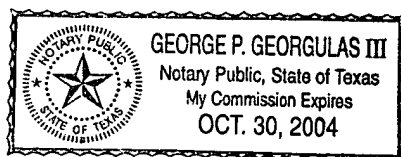
known to me to be the person whose name is subscribed to the foregoing instrument, and that he signed same for the purpose and consideration therein expressed.

GIVEN UNDER MY HAND AND SEAL OF OFFICE, on this 10th day of December 2003.

10 Dec 2003  
Date

Notary Public in and for the State of Texas. Commission expires: OCT 30, 2004

(Seal)



## Document

Designation: Patent Application

File Number: P99260AL

Filing Date: 8 February 2000

Addressee: Commissioner of the Patent Office

International Patent  
Classification:

B 01 D 53/70

## Inventor

Name: Manabu HIRAOKA

Address: Harima Technical Center  
Air Liquide Japan, Ltd.  
16, Niijima, Harima-cho, Kako-gun, Hyogo Prefecture

## Inventor

Name: Hideji KAWANAKA

Address: Harima Technical Center  
Air Liquide Japan, Ltd.  
16, Niijima, Harima-cho, Kako-gun, Hyogo Prefecture

## Inventor

Name: Yoshihiro IBARAKI

Address: Tokyo Management Center  
Air Liquide Japan, Ltd.  
1-9-1, Shinonome, Koto-ku, Tokyo, Japan

## Inventor

Name: Shinichi ANDO

Address: Tokyo Management Center  
Air Liquide Japan, Ltd.  
1-9-1, Shinonome, Koto-ku, Tokyo, Japan

Patent Applicant

Identification  
Number: 000109428

Name: Air Liquide Japan, Ltd.

Address: 1-9-1, Shinonome, Koto-ku, Tokyo

**Agent**

Identification  
Number: 100092266

Name: Takao SUZUKI, Patent Attorney

Address: Onishi Building, 2-7, Nishi Nakajima 7-chome  
Yodogawa-ku, City of Osaka, Osaka Metropolitan Prefecture

Telephone: 06-6838-0505

**Assigned Agent**

Identification  
Number: 100097386

Name: Kazuto MURONOZONO, Patent Attorney

Address: Onishi Building, 2-7, Nishi Nakajima 7-chome  
Yodogawa-ku, City of Osaka, Osaka Metropolitan Prefecture

Telephone: 06-6838-0505

**Assigned Agent**

Identification  
Number: 100104422

Name: Koichi KAJISAKI, Patent Attorney

Address: Onishi Building, 2-7, Nishi Nakajima 7-chome  
Yodogawa-ku, City of Osaka, Osaka Metropolitan Prefecture

Telephone: 06-6838-0505

**Assigned Agent**

## Identification

Number: 100105717

Name: Yuzo OZAKI, Patent Attorney

Address: Onishi Building, 2-7, Nishi Nakajima 7-chome  
Yodogawa-ku, City of Osaka, Osaka Metropolitan Prefecture

Telephone: 06-6838-0505

## Assigned Agent

## Identification

Number: 100104101

Name: Toshihiko TANIGUCHI, Patent Attorney

Address: Onishi Building, 2-7, Nishi Nakajima 7-chome  
Yodogawa-ku, City of Osaka, Osaka Metropolitan Prefecture

Telephone: 06-6838-0505

## Status of Application Fee Payment

Prepayment Ledger No.: 074403

Amount of Payment: 21,000 yen

## List of Documents Submitted

|       |               |   |
|-------|---------------|---|
| Type: | Specification | 1 |
|-------|---------------|---|

|       |          |   |
|-------|----------|---|
| Type: | Drawings | 1 |
|-------|----------|---|

|       |          |   |
|-------|----------|---|
| Type: | Abstract | 1 |
|-------|----------|---|

Proof Request: Requested



(Document Designation) Specification

## Title of the Invention

Method and apparatus for decomposing perfluorocompounds

## Claims

Claim 1. Method for decomposing perfluorocompounds in which a perfluorocompound-containing gas is brought into heated contact with solid reagent and the fluorine component is fixed by said reagent, characterized in that the reagent contains an alkaline-earth metal compound and aluminum oxide.

Claim 2. Reagent for decomposing perfluorocompounds, that contains an alkaline-earth metal compound and aluminum oxide.

Claim 3. The reagent described in claim 2 for decomposing perfluorocompounds, in which the aforesaid alkaline-earth metal compound is magnesium oxide.

Claim 4. Apparatus for decomposing perfluorocompounds that is provided with a reaction section packed with solid reagent, a gas throughflow pathway that can feed perfluorocompound-containing gas to the reaction section and can withdraw post-

reaction gas, and heating means that can heat the aforesaid reaction section or the gas fed to the reaction section, said apparatus being characterized in that the aforesaid reagent is reagent as described in claim 2 or 3 for decomposing perfluorocompounds.

## Detailed Description of the Invention

[0001]

### Field of the Invention

This invention relates to a reagent-based method for decomposing perfluorocompounds (hereafter referred to as PFCs), e.g., SF<sub>6</sub>, CF<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>F<sub>6</sub>, to the reagent used by this method, and to an apparatus for carrying out this method.

[0002]

### Description of the Prior Art

PFCs are used in the semiconductor industry as etchants and equipment cleaning agents. However, it has recently been confirmed that PFCs cause global warming when directly discharged into the atmosphere — a position adopted by the Third Conference of Parties (COP3) of the UN Framework Convention on Climate Change — and it is therefore desirable that PFCs be decomposed after their use.

[0003]

The technologies available to date for decomposing PFCs include reagent-based decomposition, catalytic decomposition, and combustion. Reagent-based decomposition and catalytic decomposition are energetically more favorable since the interatomic bonding forces in PFCs are very high, making PFCs poorly reactive (heating to at least 1,100°C is required for thermal decomposition). Compared to catalytic decomposition methods, reagent-based decomposition methods, because they can fix the fluorine atom with the reagent, more thoroughly prevent discharge of fluorine gas and hydrofluoric acid from the system and have the advantage of rendering a post-treatment unnecessary. In addition, they do not require a steam feed into the influent and frequently are also advantageous on a cost basis.

[0004]

With regard to reagent-based PFC decomposition methods, for example, Japanese Laid Open (Unexamined or Kokai or A) Patent Application Number Hei 8-187302 (187,302/1996) discloses a method in which fluorocarbon is brought into contact in a nonoxidizing atmosphere with reagent comprising solid carbonaceous material and an alkaline-earth metal compound. Japanese Laid Open (Unexamined or Kokai or A) Patent Application Number Hei 10-277363 (277,363/1998) discloses a method in which fluorocarbon is brought into contact at a temperature of at least 200°C with reagent containing carbon, alkaline-earth metal, and alkali metal and the halogen component is fixed by the reagent.

[0005]

### Problems to Be Solved by the Invention

When the reagent contains carbonaceous material, however, there is a pronounced tendency for the strength after granulation and calcination to be inadequate. Moreover, when oxygen is present in the gas undergoing treatment, the carbon is consumed by reaction, which leads to a decline in the strength of the reagent and makes it difficult to carry out the desired reaction.

[0006]

Therefore, an object of this invention is to provide a safe, low-temperature, and very efficient method for decomposing PFCs using a chemically stable reagent that also exhibits a stable strength. Additional objects are to provide the reagent used by this method and an apparatus for carrying out this decomposition method.

[0007]

### Means Solving the Problems

In order to achieve these objects, the inventors carried out various investigations into the constituent components of the reagent used for the decomposition reaction. It was discovered that the aforesaid objects could be achieved by the use as the reagent of aluminum oxide containing an alkaline-earth metal compound. This invention was achieved based on this discovery.

[0008]

In specific terms, the decomposition method according to this invention comprises a method for decomposing perfluorocompounds in which a perfluorocompound-containing gas is brought into heated contact with solid reagent and the fluorine component is fixed by said reagent, said method being characterized in that the reagent contains an alkaline-earth metal compound and aluminum oxide.

[0009]

The reagent according to this invention is a reagent for decomposing perfluorocompounds that contains an alkaline-earth metal compound and aluminum oxide.

[0010]

The alkaline-earth metal compound referenced above is preferably magnesium oxide.

[0011]

The decomposition apparatus according to the present invention comprises an apparatus for decomposing perfluorocompounds that is provided with a reaction section packed with solid reagent, a gas throughflow pathway that can feed perfluorocompound-containing gas to the reaction section and can withdraw post-reaction gas, and a heating means that can heat the aforesaid reaction section or the gas fed to the reaction section, said decomposition apparatus being characterized in

that the aforesaid reagent is a reagent for decomposing perfluorocompounds as described above.

[0012]

#### Function

The decomposition method according to the present invention, through its use of reagent containing an alkaline-earth metal compound and aluminum oxide, enables the safe, low-temperature decomposition of PFCs at very good efficiencies, as shown by the results in the examples, using a chemically stable reagent that also exhibits a stable strength. The reason for this is not understood in detail, but the following can be postulated.

[0013]

During the reaction between the alkaline-earth metal compound and perfluorocompound that results in fixing of the fluorine component, it is thought that the aluminum oxide has a catalytic activity that accelerates this reaction. The aluminum oxide is therefore not consumed by the reaction between these two species, and since it functions as a binder component a reagent is obtained that is stable both chemically and in terms of strength. Moreover, since aluminum oxide by itself functions as a catalyst or reagent vis-à-vis PFC decomposition, the aluminum oxide can maintain the PFC decomposition rate to some degree even as the alkaline-earth metal compound is consumed.

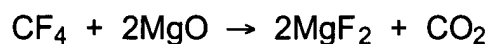
[0014]

For the same reasons as described above, the reagent according to this invention can carry out a safe, low-temperature decomposition of PFCs at very good efficiencies using reagent that is stable both chemically and in terms of strength.

[0015]

The direct decomposition of PFCs at good efficiencies is believed to proceed according to the following reaction equations when magnesium oxide is used as the alkaline-earth metal compound

[0016]



The same reactions are presumed to occur with the other alkaline-earth metal oxides. In the case of, for example, the metal carbonates and metal nitrates, the metal oxide is produced during the calcination associated with production or during the decomposition reaction and the above-described reactions are believed to form a part of the elementary reactions.

[0017]

The decomposition apparatus according to this invention can, again as described above, carry out the safe, low-temperature decomposition of PFCs at very good efficiencies using reagent that is stable both chemically and in terms of strength.

[0018]

#### Embodiments of the Invention

The reagent, apparatus, and method for decomposing PFCs will be explained in this sequence in the following using embodiments of this invention.

[0019]

#### **The reagent for PFC decomposition**

The inventive reagent for decomposing PFCs contains an alkaline-earth metal compound and aluminum oxide.

[0020]

Be, Mg, Ca, Sr, and Ba are examples of the alkaline-earth metal that can be present in the alkaline-earth metal compound, with Ca and Mg being preferred. The alkaline-earth metal compound can be exemplified by the alkaline-earth metal oxides and hydroxides and salts such as the carbonates, wherein the alkaline-earth metal oxides are preferred. Sources of the Ca and Mg oxides, hydroxides, and carbonates can be specifically exemplified by quick lime, slaked lime, marble, magnesium carbonate, and dolomite.



[0021]

A single alkaline-earth metal compound or a mixture of alkaline-earth metal compounds can be used. The content of this metal compound should generally be 0.1 to 90 weight% with reference to the total, and is preferably 1 to 70 weight% with reference to the total and more preferably is 5 to 50 weight% with reference to the total. The treatment capacity increases with increasing content of this metal compound, but an overly large content results in the onset of a declining trend for the initial properties and the properties during the reaction.

[0022]

The aluminum oxide is preferably  $\gamma$ -alumina,  $\delta$ -alumina, or their mixture for the high reaction activity thereby afforded. The aluminum oxide content should generally be 10 to 99.9 weight% and is preferably 20 to 99 weight% and more preferably is 50 to 95 weight%.

[0023]

Organic binders such as polyvinyl alcohol and inorganic binders such as silicas and calcium hydroxide can also be used as optional components. The content of these binders in the reagent is preferably no more than 20 weight%. In addition, the impurities associated with the source materials may also be present. Catalytic components, such as Zn, Ti, Ni, Fe, Co, Zr, and Pt, may also be present, and these components may have been supported on alumina in advance.

[0024]

The reagent according to the present invention is a solid that contains the components described above. Granules with a particle size of 2 to 5 mm are preferred in order to improve the opportunity for contact with the gas being fed to decomposition. The reagent is preferably a porous granule in which starting materials with particle sizes no greater than 100  $\mu\text{m}$  have been intermixed to homogeneity. This granule can be prepared by the following process: intermixing of the various source materials, supra, in powder form; addition of a suitable amount of water along with, depending on the particular circumstances, addition of an appropriate binder; kneading and granulation; then drying and evaporation of the moisture fraction.

[0025]

Calcined granules are particularly preferred for the granules under consideration; these may be prepared by post-calcination grinding. When post-calcination grinding is employed, it can be implemented by a process in which the various source materials are mixed and subjected to compression molding and then calcined and the calcinate is ground and classified.

[0026]

The kneader used for kneading is preferably a device that can carry out mixing and granulation at the same time. For example, the use of a Henschel mixer or vertical mixer enables mixing and granulation to be carried out simultaneously. However, it will

also be possible to first mix the source materials using a Henschel mixer or V-mixer and to thereafter carry out granulation using a pan granulator or a drum pelletizer.

[0027]

### **The apparatus for PFC decomposition**

As illustrated in Figure 1, the inventive apparatus for PFC decomposition is provided with a reaction section **2** that is packed with solid reagent **1**, gas throughflow pathways **3a** to **3c** that can feed perfluorocompound-containing gas to the reaction section **2** and can withdraw post-reaction gas, and heating means **4a**, **4b** that can heat the aforesaid reaction section **2** or the gas fed to the reaction section **2**. The particular embodiment under consideration illustrates an example that is also provided with valves **V1** and **V2** for adjusting the feed rate and dilution concentration of the gas to be treated (hereafter referred to as the substrate gas), a preheater **5** that preheats the substrate gas, and a cooler **6** that cools the effluent gas.

[0028]

The flow rate of PFC-containing gas supplied as effluent gas from a semiconductor fabrication facility is adjusted by the valve **V2**. The overall feed rate and dilution concentration of the substrate gas are adjusted by adjusting the feed rate of dilution gas, for example, nitrogen, using the valve **V1**. The substrate gas is then introduced into the conduit section **5a** of the preheater **5** and is preheated by heat exchange

against hot gas that has been discharged from the reaction section **2** and introduced into the container **5b**.

[0029]

The reaction section **2** is provided with an inner tube **2a** and an outer tube **2b** fabricated of material capable of withstanding temperatures as high as 1,000°C and above, for example, an alumina furnace core tube. The inventive reagent **1** is packed and supported between these tubes. A heating means **4b** provided with an electric heater, for example, a ceramic heater, is disposed on the circumference of the outer tube **2b** of the reaction section **2**, while a heating means **4a** provided with an electric heater is disposed in the interior of the inner tube **2a**. Ceramic-sheathed thermocouples (not shown) are provided in various regions of the reagent **1** for the purpose of temperature control. In addition, the reagent **1** may be filled divided into a plurality of stages with the reagent residing further downstream having a higher strength.

[0030]

The preheated substrate gas is introduced through the gas throughflow pathway **3a** into the inner tube **2a** of the reaction section **2** and is heated to around the reaction temperature by the heating means **4a**. The heated substrate gas then passes through the lower gas throughflow pathway **3b** and is thereafter brought into contact with the granular reagent **1** while traversing the gap. It is discharged after the decomposition reaction through the gas throughflow pathway **3c**.

[0031]

The discharged gas is discharged through the preheater **5** and is cooled to an appropriate temperature by a cooler **6** that is provided with an air-cooling fan.

[0032]

In addition to the production of, for example, hydrogen fluoride, nitrogen oxides due to dilution with air or nitrogen, etc., sulfur oxides may be produced in some cases, and as a consequence a treatment column may be provided as a post-stage for the reaction section **2** in order to remove these decomposition products.

[0033]

Two reaction sections **2** may be arranged in parallel, and these may be used by switching between the two reaction sections **2** based on detection of a spent condition for the reagent **1** by a fluorine component detection means provided in a downstream stage from the reaction sections **2**. An adsorption element (for example, soda lime) for removal of the fluorine component can be provided downstream from the fluorine component detection means.

[0034]

#### **The method for PFC decomposition**

With respect to methods for decomposing perfluorocompounds in which a perfluorocompound-containing gas is brought into heated contact with solid reagent and

the fluorine component is fixed by said reagent, the inventive method for decomposing PFCs is characterized in that said reagent is reagent according to the present invention as described above. Since this reagent as well as the decomposition process and decomposition apparatus are the same as in the preceding, the feed to the decomposition method and the conditions for the method will be described below.

[0035]

The substrate gas is perfluorocompound-containing gas, in which the perfluorocompound concentration is preferably about 0.1 to 10 volume%. Dilution with an inert gas such as nitrogen or a rare gas is particularly preferred.

[0036]

The perfluorocompound can be exemplified by  $\text{SF}_6$ ,  $\text{CF}_4$ ,  $\text{C}_2\text{F}_6$ , and  $\text{NF}_3$ . While the effluent gas from a semiconductor fabrication facility may at the same time also contain such species as fluorohydrocarbons, chlorofluorocompounds, etc., the inventive decomposition method is also effective against these species.

[0037]

The heating temperature will vary as a function of the perfluorocompound present and the other reaction conditions and is therefore preferably determined as appropriate from a consideration of the decomposition rate. Heating to at least  $500^\circ\text{C}$  is generally preferred, while decomposition rates near 100% can be obtained in particular at 700 to  $800^\circ\text{C}$ .  $\text{NF}_3$  can be decomposed at  $\geq 250^\circ\text{C}$ .

[0038]

The substrate gas flow rate is preferably, for example, about 2 to 10 L/minute per 200 g reagent, and a space velocity of 100 to 2,000  $\text{hr}^{-1}$  is preferred. The reagent filling height (apparent residence length) is preferably at least 50 mm and more preferably is at least 250 mm.

[0039]

#### Examples

Working examples that specifically illustrate the structure and advantageous effects of this invention are described below.

[0040]

#### Example 1

$\text{CF}_4$  gas was first diluted with nitrogen to 1 volume% and was then introduced at 2 L/minute ( $\text{SV} = 240 \text{ hr}^{-1}$ ) into a high-temperature treatment tube (the reaction section) having an internal diameter of 50 mm and packed with 400 g reagent. A decomposition reaction was carried out while controlling the interior temperature to approximately 800°C using an incorporated heater. The reagent used here was a  $\text{MgO}-\text{Al}_2\text{O}_3$  reagent ( $\text{MgO}$ : 5 weight%) with a diameter of approximately 3 mm prepared by mixing 5 weight

parts MgO powder with 95 weight parts  $\text{Al}_2\text{O}_3$  powder and a small amount of water, compression molding, then grinding and particle sizing.

[0041]

The effluent gas was analyzed by nondispersive infrared absorption spectroscopy (ND-IR) and the  $\text{CF}_4$  decomposition rate was determined using the equation given below.

[0042]

decomposition rate = 
$$\frac{(\text{CF}_4 \text{ concentration in the feed gas} - \text{CF}_4 \text{ concentration in the effluent gas})}{\text{CF}_4 \text{ concentration in the feed gas}} \times 100 (\%)$$

The results showed that the decomposition rate reached 100.0% when the internal temperature reached 800°C, remained at 100.0% for about 150 minutes, and then gradually declined to reach  $\leq 90\%$  after 190 minutes. Fluorine component, e.g., fluorine gas, was almost entirely absent from the effluent gas when the decomposition rate was 100%.

[0043]

## Example 2

$\text{CF}_4$  gas was subjected to decomposition using the same conditions as in Example 1, with the modification that MgO– $\text{Al}_2\text{O}_3$  reagent (MgO: 1 weight%) was used in place of the reagent used in Example 1. The results showed that the decomposition rate



reached approximately 100% when the internal temperature reached 800°C, gradually declined after 120 minutes, and reached  $\leq 90\%$  after 150 minutes.

[0044]

#### Comparative Example 1

CF<sub>4</sub> gas was subjected to decomposition using the same conditions as in Example 1, with the modification that active Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (NKHD-46HD from Sumitomo Chemical Co., Ltd.) was used in place of the MgO–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> reagent used in Example 1. Although the maximum decomposition rate did reach 100%, a fairly large amount of HF and F<sub>2</sub> was detected in the effluent gas, and the 100% decomposition rate was maintained for only 50 minutes. A decomposition rate  $\geq 90$  was maintained for 90 minutes.

[0045]

#### Comparative Example 2

CF<sub>4</sub> gas was subjected to decomposition using the same conditions as in Example 1, with the modification that Ni–MgO reagent (MgO: 13.5 weight%, Ni: 38 weight%) was used in place of the reagent used in Example 1. Even at its highest level the resulting decomposition rate was low at approximately 20%.

[0046]

### Comparative Example 3

CF<sub>4</sub> gas was subjected to decomposition using the same conditions as in Example 1, with the modification that Na<sub>2</sub>O–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> reagent (diameter about 5 mm, Na<sub>2</sub>O: 1 weight%) was used in place of the reagent used in Example 1. Although the maximum decomposition rate did reach 100%, the 100% decomposition rate was maintained for only 30 minutes. A decomposition rate  $\geq 90$  was maintained for 70 minutes.

### Brief Description of the Drawings

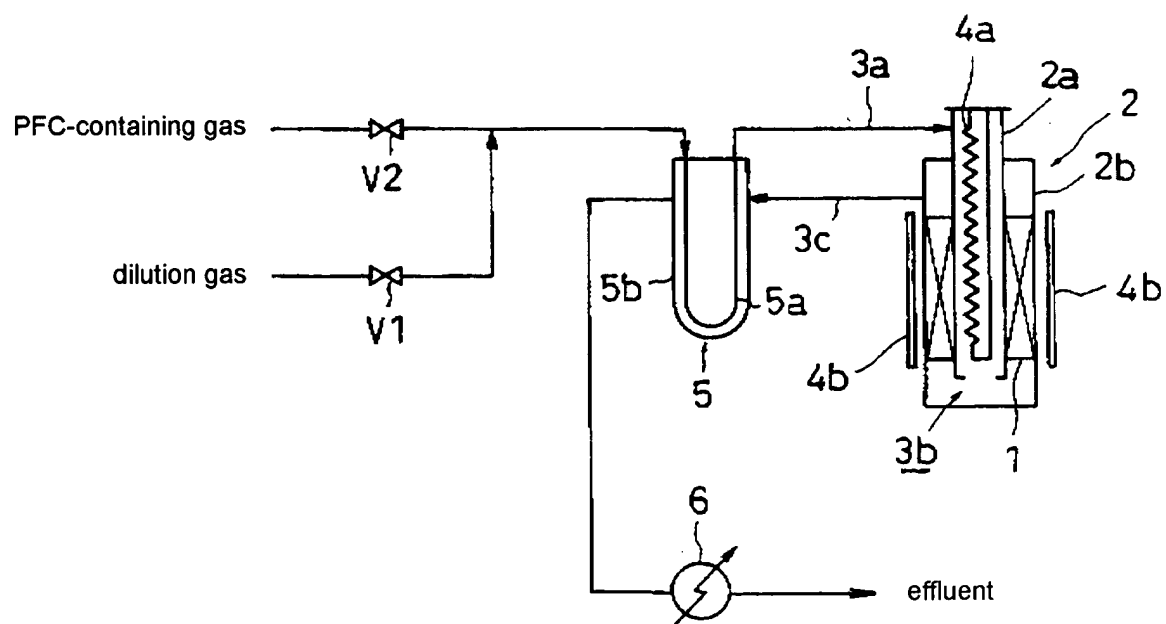
Figure 1 contains a schematic structural drawing that illustrates an example of the inventive decomposition apparatus.

#### Reference symbols

|        |       |                         |
|--------|-------|-------------------------|
| 1      | ..... | reagent                 |
| 2      | ..... | reaction section        |
| 3a-3c  | ..... | gas throughflow pathway |
| 4a, 4b | ..... | heating means           |

## (Document Designation) Drawings

Figure 1.



(Document Designation) Abstract

## Abstract

(Problem)

To provide a safe, low-temperature, and highly efficient method for decomposing PFCs using a chemically stable reagent that also exhibits a stable strength; the reagent used by this method; and an apparatus for carrying out this decomposition method.

(Solution)

Method for decomposing perfluorocompounds in which a perfluorocompound-containing gas is brought into heated contact with solid reagent and the fluorine component is fixed by said reagent, characterized in that the reagent contains an alkaline-earth metal compound and aluminum oxide.

(Selected Drawing(s))

None

55300

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2000年 2月 8日  
Date of Application:

出願番号 特願2000-030094  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP 2000-030094]

出願人 ジャパン・エア・ガシズ株式会社  
applicant(s):

2003年11月25日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫

出証番号 出証特2003-3097258

【書類名】 特許願

【整理番号】 P99260AL

【提出日】 平成12年 2月 8日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B01D 53/70

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県加古郡播磨町新島16番 日本エア・リキード株式会社 播磨テクニカルセンター内

【氏名】 平岡 学

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県加古郡播磨町新島16番 日本エア・リキード株式会社 播磨テクニカルセンター内

【氏名】 川中 秀治

【発明者】

【住所又は居所】 東京都江東区東雲1丁目9番1号 日本エア・リキード株式会社 本社・東京マネジメントセンター内

【氏名】 茨木 義浩

【発明者】

【住所又は居所】 東京都江東区東雲1丁目9番1号 日本エア・リキード株式会社 本社・東京マネジメントセンター内

【氏名】 安藤 伸一

【特許出願人】

【識別番号】 000109428

【住所又は居所】 東京都江東区東雲1丁目9番1号

【氏名又は名称】 日本エア・リキード株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100092266  
【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島7丁目2番7号大西ビル  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 鈴木 崇生  
【電話番号】 06-6838-0505

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100097386  
【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島7丁目2番7号大西ビル  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 室之園 和人  
【電話番号】 06-6838-0505

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100104422  
【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島7丁目2番7号大西ビル  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 梶崎 弘一  
【電話番号】 06-6838-0505

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100105717  
【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島7丁目2番7号大西ビル  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 尾崎 雄三  
【電話番号】 06-6838-0505

【選任した代理人】

【識別番号】 100104101

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区西中島7丁目2番7号大西ビル

【弁理士】

【氏名又は名称】 谷口 俊彦

【電話番号】 06-6838-0505

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 074403

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要



【書類名】 明細書

【発明の名称】 パーフルオロ化合物の分解方法及び分解装置

【特許請求の範囲】

【請求項1】 パーフルオロ化合物を含むガスを固体状の反応剤と加熱下で接触させて、その反応剤にフッ素成分を固定するパーフルオロ化合物の分解方法において、

前記反応剤が、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有することを特徴とするパーフルオロ化合物の分解方法。

【請求項2】 アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有するパーフルオロ化合物の分解用反応剤。

【請求項3】 前記アルカリ土類金属化合物が、酸化マグネシウムである請求項2に記載のパーフルオロ化合物の分解用反応剤。

【請求項4】 固体状の反応剤を充填した反応部と、その反応部にパーフルオロ化合物を含むガスを供給して反応後のガスを排出可能なガス流通経路と、前記反応部又はその反応部に供給されるガスを加熱する加熱手段とを備えるパーフルオロ化合物の分解装置において、

前記反応剤が、請求項2又は3に記載のパーフルオロ化合物の分解用反応剤であることを特徴とするパーフルオロ化合物の分解装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、 $\text{SF}_6$ 、 $\text{CF}_4$ 、 $\text{C}_2\text{F}_6$ 等のパーフルオロ化合物（以下、PFCという）を反応剤を用いて分解処理する分解方法、それに用いる反応剤及びその分解装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来より、PFCは、半導体工場等においてエッチング剤、機器洗浄剤等に使われている。しかし、そのまま大気放出すると、近年、地球温暖化会議等で取り上げられているように、地球の温暖化を引き起こすことが判明しており、使用後

には分解することが望ましいとされている。

#### 【0003】

これまでPFCを分解する技術として、反応剤分解法、触媒分解法、燃焼分解法等が提案されているが、PFCは分子間の結合力がきわめて強く反応性に乏しい（熱分解では、1100℃以上の加熱が必要）ため、反応剤分解法や触媒分解法がエネルギー的に有利となる。このうち、反応剤を用いた分解法は、触媒分解法と比較して、フッ素原子を反応剤に固定できるため、フッ素ガスやフッ酸等が系外に排出されにくく、後処理が不要になるという利点があり、また、原料に水蒸気等を供給する必要がなく、コスト的にも有利な場合も多い。

#### 【0004】

反応剤を用いたPFCの分解法としては、例えば特開平8-187302号公報において弗化炭素類を非酸化性雰囲気中で炭素質固体材料とアルカリ土類金属化合物からなる反応剤に接触させる方法や、特開平10-277363号公報において弗化炭素類を200℃以上で、炭素、アルカリ土類金属、及びアルカリ金属を含有する反応剤に接触させ、ハロゲン成分を反応剤に固定する方法が開示されている。

#### 【0005】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、炭素質固体材料を含む反応剤を用いる場合、造粒・焼成後の強度が不十分になり易く、また、被処理ガス中に酸素等が含まれる場合に炭素が反応で消費され、これにより反応剤の強度が低下して、所望の反応が行いにくいなどの問題があった。

#### 【0006】

そこで、本発明の目的は、化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、PFCを低温で効率良く、安全に分解処理する分解方法、それに用いる反応剤及びその分解装置を提供することにある。

#### 【0007】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記目的を達成すべく、分解反応に使用する反応剤の構成成分

について各種検討したところ、アルカリ土類金属化合物を含有する酸化アルミニウムを反応剤として用いることにより、上記目的が達成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

#### 【0008】

即ち、本発明の分解方法は、パーフルオロ化合物を含むガスを固体状の反応剤と加熱下で接触させて、その反応剤にフッ素成分を固定するパーフルオロ化合物の分解方法において、前記反応剤が、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有することを特徴とする。

#### 【0009】

また、本発明の反応剤は、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有するパーフルオロ化合物の分解用反応剤である。

#### 【0010】

上記において、前記アルカリ土類金属化合物が、酸化マグネシウムであることが好ましい。

#### 【0011】

一方、本発明の分解装置は、固体状の反応剤を充填した反応部と、その反応部にパーフルオロ化合物を含むガスを供給して反応後のガスを排出可能なガス流通経路と、前記反応部又はその反応部に供給されるガスを加熱する加熱手段とを備えるパーフルオロ化合物の分解装置において、前記反応剤が、上記の如きパーフルオロ化合物の分解用反応剤であることを特徴とする。

#### 【0012】

##### [作用効果]

本発明の分解方法によると、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有する反応剤を使用するため、実施例の結果が示すように、化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、PFCを低温で効率良く、安全に分解処理することができる。その理由の詳細は明らかではないが、次のように推測される。

#### 【0013】

つまり、アルカリ土類金属化合物がパーフルオロ化合物と反応してフッ素成分を固定する際、酸化アルミニウムが当該反応を促進させる触媒的な働きを有する

と考えられる。このため、酸化アルミニウムはその間の反応では消費されず、これをバインダー成分とするため、化学的及び強度的により安定な反応剤となる。なお、酸化アルミニウムは単独でも PFC の分解に対して触媒又は反応剤としての機能を有するため、アルカリ土類金属化合物が消費されても PFC の分解率がある程度維持することができる。

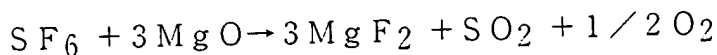
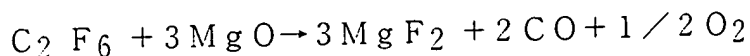
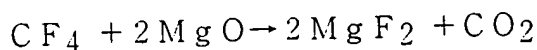
## 【0014】

また、本発明の反応剤によると、上記と同様の理由により、化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、PFC を低温で効率良く、安全に分解処理することができる。

## 【0015】

前記アルカリ土類金属化合物が酸化マグネシウムである場合、下記の反応式により、直接、効率良く PFC を分解することができると考えられる。

## 【0016】



また、他のアルカリ土類金属酸化物についても同様の反応が推定される。なお、金属炭酸塩や金属硝酸塩などの場合では、製造時の焼成中や分解反応中に金属酸化物が生成するなどし、素反応の一部として上記反応が考えられる。

## 【0017】

一方、本発明の分解装置によると、上記と同様に、化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、PFC を低温で効率良く、安全に分解処理することができる。

## 【0018】

## 【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について、PFC 分解用反応剤、PFC の分解装置、PFC の分解方法の順で説明する。

## 【0019】

[PFC 分解用反応剤]

本発明のPFC分解用反応剤は、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有するものである。

#### 【0020】

アルカリ土類金属化合物を構成するアルカリ土類金属としては、Be、Mg、Ca、Sr、Baなどが挙げられ、好ましくはCaとMgである。また、アルカリ土類金属化合物としては、アルカリ土類金属の酸化物、水酸化物または炭酸塩等の塩類が挙げられ、好ましいものはアルカリ土類金属の酸化物である。CaまたはMgの酸化物、水酸化物または炭酸塩などの原料の具体例としては、生石灰、消石灰、大理石、炭酸マグネシウム、ドロマイト等が挙げられる。

#### 【0021】

これらのアルカリ土類金属化合物は単独又は混合して使用できる。これらの金属化合物の含有量は、総量で通常、0.1～90重量%、好ましくは1～70重量%、より好ましくは5～50重量%である。これらの金属化合物の含有量が多い程、処理能力が増加するが、含有量が多過ぎると、初期の物性や反応時の物性が低下する傾向がある。

#### 【0022】

酸化アルミニウムとしては、 $\gamma$ -アルミナ、 $\delta$ -アルミナ、これらの混合物などが反応活性が高いため好ましい。酸化アルミニウムの含有量は、通常、10～99.9重量%、好ましくは20～99重量%、より好ましくは50～95重量%である。

#### 【0023】

また、任意成分として、ポリビニルアルコールなどの有機バインダー、又はシリカ系、水酸化カルシウムなどの無機バインダーを使用することもでき、このようなバインダーは、好ましくは反応剤中に20重量%以下で配合される。その他、原料に同伴する不純物などを含有してもよい。また、Zn、Ti、Ni、Fe、Co、Zr、Ptなどの触媒成分を更に含有させてもよく、これらの成分を予めアルミナに担持させてもよい。

#### 【0024】

本発明の反応剤は、上記の成分を含有する固形物であり、分解に供するガスと

の接触機会を高める上では、2～5mmの粒径を有する粒状物が好ましい。また、粒径が100 $\mu$ m以下の原料が均一に混ざり合ったポーラスな造粒物であるのが好ましい。粒状物とするには、前記した各原料の粉体を混合し、適量の水と共に、或いは、場合によっては適切なバインダーを加えて混練・造粒し、次いで乾燥して水分を蒸発させるという工程で造粒物とすればよい。

#### 【0025】

特に好ましい粒状物は焼成された粒状物であり、焼成後に粉砕して粒状物としたものでもよい。焼成後に粉砕する場合、各原料を混合して圧縮成型後に焼成し、これを粉砕して分級するなどすればよい。

#### 【0026】

混練に使用する混練機としては、混合・造粒が同時に行えるものが好ましく、例えば、ヘンシェルミキサーや縦型ミキサーを用いると混合と造粒を同時に行うことができる。但し、原料の混合をヘンシェルミキサーやV型混合機で行い、次いで造粒を皿型造粒機やドラムペレタイザーで行ってもよい。

#### 【0027】

##### 〔PFCの分解装置〕

本発明のPFCの分解装置は、図1に示すように、固体状の反応剤1を充填した反応部2と、その反応部2にパーフルオロ化合物を含むガスを供給して反応後のガスを排出可能なガス流通経路3a～3cと、前記反応部2又はその反応部2に供給されるガスを加熱する加熱手段4a、4bとを備える。本実施形態では、被処理ガスの供給量や希釈濃度を調節する弁V1、V2と、被処理ガスを予熱する予熱器5と、排出されるガスを冷却する冷却器6とを更に備える例を示す。

#### 【0028】

半導体製造設備からの排ガスとして供給される含PFCガスは、弁V2により供給量が調節され、窒素ガス等の希釈ガスの供給量を弁V1により調節することで、被処理ガスの総供給量や希釈濃度が調節される。その後、被処理ガスは、予熱器5の管部5aに導入され、反応部2から排出され容器5bに導入された高温ガスと熱交換して、予熱される。

#### 【0029】

反応部 2 は、アルミナ炉芯管などの 1000℃以上の高温でも耐えうる材質で作製した内筒 2 a と外筒 2 b とを備え、その間に本発明の反応剤 1 を充填・支持してある。反応部 2 の外筒 2 b の周囲には、セラミックヒータなどの電気ヒータを備える加熱手段 4 b が設けられており、また、内筒 2 a の内部には電気ヒータを備える加熱手段 4 a が設けられており、反応剤 1 は加熱手段 4 a と加熱手段 4 b の両者により加熱される。反応剤 1 の各部には、温度制御のためのセラミック保護管付熱電対を設置してある（図示省略）。なお、反応剤 1 を複数段に分けて充填し、下側の反応剤ほど強度が高いものを使用してもよい。

#### 【0030】

予熱された被処理ガスは、ガス流通経路 3 a を介して反応部 2 の内筒 2 a に導入され、加熱手段 4 a で反応温度付近まで加熱される。加熱された被処理ガスは、下部のガス流通経路 3 b を経た後、粒状の反応剤 1 と接触しつつ間隙を流通し、分解反応した後、ガス流通経路 3 c を経て排出される。

#### 【0031】

排出されたガスは、予熱器 5 を経て、空冷ファンを備える冷却器 6 で適当な温度まで冷却され、排出される。

#### 【0032】

なお、窒素ガス希釈、空気希釈による窒素酸化物、フッ化水素などが生成するほか、硫黄酸化物が生成される場合があるため、これらの分解生成物を除去するために、反応部 2 の後段に処理塔を設置してもよい。

#### 【0033】

また、反応部 2 を 2 基並列に設けて、反応剤 1 の消費状態を反応部 2 の後段に設けたフッ素成分検出手段により検知して、両者の反応部 2 を交互に使用するようにしてもよい。また、フッ素成分検出手段の後段にフッ素成分を除去する吸着部（ソーダライム等）を設けてもよい。

#### 【0034】

##### 〔PFC の分解方法〕

本発明の PFC の分解方法は、パーフルオロ化合物を含むガスを固体状の反応剤と加熱下で接触させて、その反応剤にフッ素成分を固定するパーフルオロ化合

物の分解方法において、前記反応剤が前述の如き本発明の反応剤であることを特徴とする。当該反応剤や分解操作、分解装置については前述の通りであるため、以下、分解方法の原料、条件等について説明する。

#### 【0035】

被処理ガスは、パーフルオロ化合物を含むガスであり、パーフルオロ化合物の濃度は、0.1～10 vol %程度が好ましい。特に、窒素ガス、希ガス等の不活性ガスで希釈されていることが好ましい。

#### 【0036】

パーフルオロ化合物としては、 $\text{SF}_6$ 、 $\text{CF}_4$ 、 $\text{C}_2\text{F}_6$ 、 $\text{NF}_3$ などが挙げられる。なお、半導体製造設備からの排ガスの場合、同時にフルオロ炭化水素、含塩素フルオロ化合物なども含有される場合があり、本発明の分解方法はこれらに対しても有効である。

#### 【0037】

加熱温度は、含有されるパーフルオロ化合物や他の反応条件によるため、分解率との兼ね合いで適宜決定するのが好ましい。一般的には、500℃以上に加熱するのが好ましく、特に700～800℃で100%に近い分解率を得ることができる。なお、 $\text{NF}_3$ の場合には、250℃以上で分解が可能である。

#### 【0038】

被処理ガスのガス流量は、例えば200 gの反応剤に対して2～10 L/min程度が好ましく、また、空間速度100～2000  $\text{hr}^{-1}$ 程度が好ましい。なお、反応剤の充填高さ（見掛け滞留長さ）は50 mm以上が好ましく、250 mm以上がより好ましい。

#### 【0039】

##### 【実施例】

以下、本発明の構成と効果を具体的に示す実施例等について説明する。

#### 【0040】

##### 実施例 1

$\text{CF}_4$  ガスをあらかじめ窒素ガスにて1 vol %に希釈した後、反応剤を40 g 充填した内径50 mmの高温処理筒内（反応部）に2 L/min（ $\text{SV} = 2$



40 hr<sup>-1</sup>)にて導入しながら、内蔵ヒーターにて内部温度を約800℃に制御しつつ分解反応を行った。その際、反応剤としては、MgO粉末5重量部とAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末95重量部とを少量の水分とともに混合して圧縮成形した後、粉碎・分粒した直径約3mmのMgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系反応剤(MgO:5重量%)を使用した。

#### 【0041】

排出されるガスを非分散型赤外線吸収スペクトル(ND-IR)により測定し、次式によりCF<sub>4</sub>の分解率を求めた。

#### 【0042】

分解率 = (供給ガス中CF<sub>4</sub>濃度 - 排出ガス中CF<sub>4</sub>濃度) / 供給ガス中CF<sub>4</sub>濃度 × 100 (%)

その結果、内部温度が800℃に到達した時点で分解率は100.0%となり、150分間ほど分解率100.0%を維持した後、徐々に分解率が低下し、190分後に分解率90%以下となった。なお、分解率100%の状態では、排出ガス中にフッ素ガス等のフッ素成分は殆ど存在しなかった。

#### 【0043】

##### 実施例2

実施例1において、反応剤として、MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系反応剤(MgO:1重量%)を使用する以外は、実施例1と同じ条件にてCF<sub>4</sub>ガスの分解を行った。その結果、内部温度が800℃に到達した時点で分解率は約100%となり、120分後から徐々に分解率が低下し、150分後に分解率90%以下となった。

#### 【0044】

##### 比較例1

実施例1における、MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系反応剤の代わりに、活性Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>剤(住友化学製、NKHD-46HD)を使用する以外は、実施例1と同じ条件にてCF<sub>4</sub>ガスの分解を行った。その結果、最高分解率は100%となったが、排出ガス中にはかなりHF及びF<sub>2</sub>が検出され、50分間しか分解率100%を維持できず、分解率90%以上の維持時間も90分間であった。

## 【0045】

### 比較例 2

実施例 1 において、反応剤として、Ni-MgO 系反応剤 (MgO : 13.5 重量%、Ni : 38 重量%) を使用する以外は、実施例 1 と同じ条件にて CF<sub>4</sub> ガスの分解を行った。その結果、最高でも分解率は約 20% と低かった。

## 【0046】

### 比較例 3

実施例 1 において、反応剤として、直径約 5 mm の Na<sub>2</sub>O-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系反応剤 (Na<sub>2</sub>O : 1 重量%) を使用する以外は、実施例 1 と同じ条件にて CF<sub>4</sub> ガスの分解を行った。その結果、最高分解率は 100% となったが、30 分間しか分解率 100% を維持できず、分解率 90% 以上の維持時間も 70 分間であった。

### 【図面の簡単な説明】

#### 【図 1】

本発明の分解装置の一例を示す概略構成図

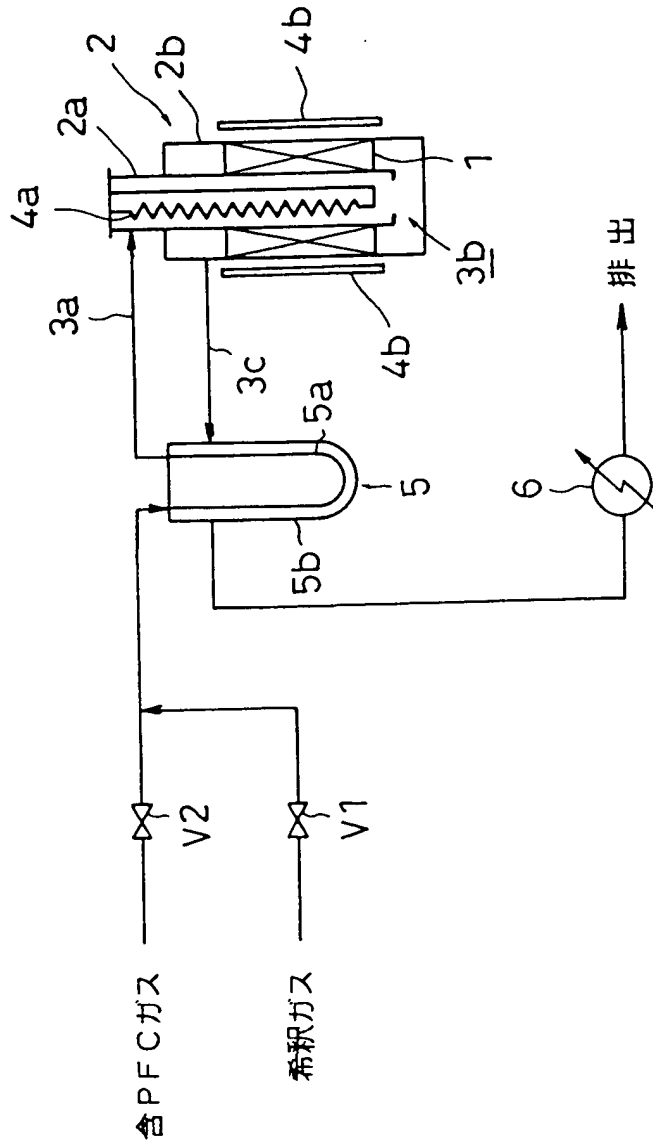
#### 【符号の説明】

- 1            反応剤
- 2            反応部
- 3 a ~ 3 c   ガス流通経路
- 4 a, 4 b    加熱手段

【書類名】

図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 化学的及び強度的により安定な反応剤を用いて、PFCを低温で効率良く、安全に分解処理する分解方法、それに用いる反応剤及びその分解装置を提供する。

【解決手段】 パーフルオロ化合物を含むガスを固体状の反応剤と加熱下で接触させて、その反応剤にフッ素成分を固定するパーフルオロ化合物の分解方法において、前記反応剤が、アルカリ土類金属化合物及び酸化アルミニウムを含有することを特徴とする。

【選択図】 なし